

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Gérard LAMBERT

PREMIÈRE THÈSE

Etude du comportement des aérosols radioactifs artificiels
Applications à quelques problèmes de circulation atmosphérique

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 19 novembre 1963 devant la Commission d'examen

MM. WYART

Président

R. LUCAS

VASSY

} Examineurs

LABEYRIE

Invité

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Gérard LAMBERT

PREMIÈRE THÈSE

Etude du comportement des aérosols radioactifs artificiels
Applications à quelques problèmes de circulation atmosphérique

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 19 novembre 1963 devant la Commission d'examen

MM. WYART

Président

R. LUCAS

VASSY

LABEYRIE

} Examineurs

Invité

PROFESSEURS

Doyen M. ZAMANSKY

G. JULIA	T Analyse supérieure et Algèbre supérieure	NOIROT	T Evolution des êtres organisés
PRENANT	T Anatomie et Histologie comparée	PANNETIER	T Chimie (Orsay)
GRASSE	T Evolution des êtres organisés	POSSOMPES	T Biologie animale (P.C.B.)
PREVOST	T Chimie organique	PULLMANN	T Chimie théorique
WYART	T Minéralogie et Cristallogr.	TEILLAC	T Physique nucléaire et radioactivité
TEISSIER	T Zoologie	TONNELAT	T Biol. physico-chimique
MANGENOT	T Biologie végétale (Orsay)	VILLE	T Econométrie
P. AUGER	T Physique quantique et relativité	WILLEMART	T Chimie (P.C.B.)
MONNIER	T Physiologie des Fonctions	DODE	T Chimie (Orsay)
PIVETEAU	T Paléontologie	FREYMAN	T Recherches Physiques
ROCARD	T Physique (E.N.S.)	GUINOCHE	T Biol. Vég. (Orsay)
CARTAN	T Mathématiques (E.N.S.)	ROLLET	T Chimie (P.C.B.)
LAFFITTE	T Chimie Générale	Mlle JOSIEN	T Chimie (P.C.B.)
FAVARD	T Géométrie supérieure	CHEVALLEY	T Géométrie algébrique et théorie des groupes
COULOMB	T Physique du Globe		
Mlle COUSIN	T Biologie	ARNOULT	T Electronique (Orsay)
CHRETIEN	T Chimie minérale	CHAPELLE	T Physique (Orsay)
DRACH	T Zoologie	DELANGE	T Mathématiques (Orsay)
KASTLER	T Physique (E.N.S.)	DENY	T Mathématiques générales (Orsay)
EPHROSSI	T Génétique	GERMAIN	T Mécanique théorique des fluides
RIVIERE	T Géologie (Orsay)	LUCAS G.	T Géologie
GAUTHERET	T Biologie (PCB)	ALLARD	T Chimie Physique
R. LUCAS	T Recherches Physiques	BERTHELOT	T Physique fondamentale des Hautes Energies (Orsay)
A. THOMAS	T Biol. cellulaire		
ARNULF	T Optique appliquée	BRICARD	T Météorologie
M. MORAND	T Physique Enseignement	Mme ALBE-FESSARD	T Psychophysiol.
SOLEILLET	T Physique (P.C.B.)	FRIEDEL	T Physique des Solides (Orsay)
FORTIER	T Mécanique expérimentale des fluides	M. JULIA	T Chimie Organ. Structurale
DANJON	T Astronomie	LENDER	T Biol. Animale (S.P.C.N.) (Orsay)
PETIT	T Biologie maritime	MAGAT	T Physico-chimie des Rayonnements
QUENEY	T Météorologie et dynamique atmosphérique	Mlle QUINTIN	T Electrochimie
GALLIEN	T Embryologie	MONOD	T Biochimie cellulaire
EICHORN	T Biologie végétale (P.C.B.)	BENOIT	T Physiologie animale (Orsay)
DE CUGNAC	T Biologie végétale (S.P.C.N.)	DE POSSEL	T Analyse numérique
Mlle CAUCHOIS	T Chimie Physique	CHARLOT	T Chimie analytique
THELLIER	T Physique du Globe	LEMEE	T Physiologie B.M.P.V. (Orsay)
L'HERITIER	T Biologie Générale (Orsay)	GUERIN	T Chimie (Orsay)
GRIVET	T Radioélectricité (Orsay)	CHATELET M.	T Chimie (P.C.B.)
PONCIN	T Mécanique générale	JEAN	T Physique (Orsay)
DUBREIL	T Arithmétique et théorie des nombres	MATTLER	T Physique (S.P.C.N.) (Orsay)
QUELET	T Chimie organique	BERGERARD	T Biol. Anim. (S.P.C.N.) (Orsay)
CAGNIARD	T Géophysique appliquée	BERTIN	T Electronique (Orsay)
CHAMPETIER	T Chimie macromolécul.	BOUSSIÈRES	T Chimie des Radioéléments (Orsay)
CUVILLIER	T Micropaléontologie	Mme COUTURE	T Thermodynamique et Mécanique Physique
JUNG.	T Pétrographie	ELLENBERGER	T Géologie appliquée
TRILLAT	T Microscopie et diffract. électronique	FRANC	T Biologie animale (P.C.B.)
WIEMANN	T Chimie organique et structurale	SCHNELL	T Botanique tropicale (Orsay)
JACQUINOT	T Spectroscopie (Orsay)	STOLKOWSKI	T Physiologie animale (P.C.B.)
VASSY	T Physique de l'atmosphère	ACHER	T Chimie Biologique (Orsay)
DESTOUCHES	T Théories physiques	BAUDOIN	T Biologie
AMIEL	T Chimie des solides	BEAUMONT	T Biologie animale
HOCART	T Minéralogie et Cristallogr.	BLAMONT	T Géophysique ionosphère
J.P. MATHIEU	T Recherches Physiques	BOURREAU	T Biologie Végétale S.P.C.N. (Orsay)
COUTEAUX	T Cytologie	CURIE D.	T Physique (M.G.P.)
MAY	T Zoologie (Orsay)	DURAND-DELGA	T Géologie
CHOQUET	T Théor. des fonctions et Topologie	FREON	T Chimie Organique (Orsay)
FELDMANN	T Biol. végétale (P.C.B.)	HELLER	T Physiologie végétale
GUINIER	T Physique des solides (Orsay)	TORTRAT	T Calcul des Probabilités
JOST	T Physiologie comparée	CAILLEUX	T Géologie (S.P.C.N.)
FORTET	T Calcul des Probabilités	MAGNAN	T Physique (P.C.B.)
SCHWARTZ	T Calc. diff. et Intégr.	DAUDEL	T Mécanique Ondulatoire appliquée à la chimie théorique et à la Physique Nucléaire
CHOUARD	T Physiologie végétale		
MALAVARD	T Aviation (Tech. Aéronaut.)	Mlle FOURCROY	T Biologie Végétale (S.P.C.N.)
BRELOT	T Calcul différentiel	Mme CHOQUET-BRUHAT	T Mécan. Analytique et méca. céleste.
NORMANT	T Synthèse organique générale	Mlle VEIL	T Physiologie Générale
BENARD	T Chimie (E.N.S.C.P.)	LWOFF	T Microbiologie
BUVAT	T Botanique (E.N.S.)	SIESTRUNCK	T Mécanique physique et Expérimentale
DUGUE	T Statistiques mathém.	LACOMBE	T Métallurgie (Orsay)
SOULAIRAC	T Psychophysiologie	BROCHARD	T Physique P.C.B. (Orsay)
ULRICH	T Physiologie végétale (E.N.S.)	CABANNES	T Mécanique générale
MARECHAL	T Optique théorique et appliquée.	LESIEUR	T Mécaniques M.P.C. (Orsay)
KIRRMANN	T Théories chimiques	MAZET	T Mécanique générale (Orsay)
CHADEFAUD	T Botanique	CAIRE	T Géographie phys. et Géolog. Dynamique
Mlle LE BRETON	T Physiologie	COMOLET	T Mécanique des fluides
LELONG	T Mathématiques générales	CORABOEUF	T Physiologie animale Orsay
DEVILLERS	T Anatomie et Histol. comparées	DELLOUE	T Physique de l'exosphère
EHRESMANN	T Topologie algébrique	GORENFLOT	T Botanique II (Orsay)
FRANÇON	T Physique (S.P.C.N.)	HOUILLO	T Biologie animale PCB
GLANGEAUD	T Géogr. physique et Géologie dynamique	JULLIEN I.	T Chimie SPCN (Orsay)
GODEMENT	T Mathématiques (M.P.C.)	MALGRANGE	T Technique Math. de la Physique (Orsay)
PISOT	T Calcul des Probabilités	OLIVIER	T Antropologie
ROCH	T Géologie	NOZERAN	T Botanique II (Orsay)
SCHATZMANN	T Astrophysique	BLANC-LAPIERRE	T Physique ENS (Orsay)
TERMIER	T Paléontologie stratigraphique	CHEVAUGEON	T Botanique (Orsay)
ZAMANSKY	T Mathématiques générales	KAHANE	T Mathématiques (Orsay)
LENNUIER	T Physique (P.C.B.)	SAMUEL	T Mathémat. ENS féminines
RIZET	T Génétique (Orsay)	KOURGANOFF	T Astronomie (Orsay)
ROUTHIER	T Géologie appliquée	THIRY	T Mécanique céleste
Mme TONNELAT	T Relativité	ABELES	T Physique SPSCN
DIXMIER	T Mathématiques (MPC)	AMAT	T Physique PCB
SOUCHAY	T Chimie (P.C.B.)	AUBOUIN	T Géologie
AIGRAIN	T Electrotechn. générale	Mme BENOIT-GUEUTAL	T Physique Nucl. et radioactivité
BRUSSET	T Chimie minérale	BOUGIS	T Biologie marine (Villefranche/mer)
M. LEVY	T Physique théorique des hautes énergies (Orsay)	BRUHAT	T Mathématique MPC
Mme CHAIX	T Chimie biologique	BRUNN	T Géologie historique (Orsay)
Mme HUREL-PY	T Biol. vég. (P.C.B.)	CHABBAL	T Physique MGF (Orsay)
PIAUX	T Chimie (S.P.C.N.)	DEHEUVELS	T Mathématique Propé (Orsay)
BRUN	T Mécanique exper. des Fluides	D'ESPAGNAT	T Physique théorique (Orsay)
LEDERER	T Chimie biologique	FURON	T Géologie SPCN
Mme DUBREIL	T Mathématiques (Agré.)	Mme GANS	T Génétique
Mme LELONG	T Mathém. (E.N.S.)	GENEVES	T Biologie végétale PCB
BELLAIR	T Géologie (S.P.C.N.)	GUILBERT	T Physique (CUS Orléans)
COTTE	T Physique (M.P.C.)	HUPE	T Pétrographie
DUBOIS J.E.	T Chimie (M.P.C.)	HOLLANDE	T Biologie générale
LAMOTTE	T Zoologie (E.N.S.)	LIONS	T Analyse numérique
MICHEL André	T Chimie Minérale (Orsay)	MAITTE	T Chimie PCB
OLMER	T Energétique Glé	MEYER	T Physique propédeutique
ROUAULT	T Physique	NICOLAS	T Géologie appliquée
GAUTHIER	T Mécanique appliquée	PANUGEL	T Biologie générale
BARCHEWITZ	T Chimie Physique	RAVIER	T Pétrographie
BROSSEL	T Physique atomique	ROSEAU	T Mécanique théor. des Fluides
BUSER	T Biologie animale (P.C.B.)	ROUBINE	T Electronique
CAMUS	T Biologie végétale (P.C.B.)	SILBER	T Chimie P.C.B.
CASTAING	T Physique (Orsay)	UEBERSFELD	T Electronique
CURIEN	T Minéralogie et cristallographie	YVON	T Théories Physiques.
MOYSE	T Physiol. Vég. (Orsay)		

Je prie M. Maurice SURDIN, chef du Département d'Electronique au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, d'accepter ici mes remerciements les plus sincères pour l'intérêt qu'il a bien voulu manifester à mon travail en suivant et autorisant tous ses développements.

Je remercie également M. Le Professeur Louis BUGNARD, directeur du Centre des Faibles Radioactivités de Gif-sur-Yvette, qui m'a permis de poursuivre dans ses laboratoires, des mesures de radioactivité nécessitant un mouvement propre particulièrement réduit.

Toute ma gratitude également va à M. Jacques LABEYRIE, chef du Service d'Electronique Physique au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay et Sous-Directeur du Centre des Faibles Radioactivités de Gif-sur-Yvette qui est à l'origine de ce travail et dont l'appui, ni les bienveillantes critiques ne m'ont jamais fait défaut ; de nombreuses techniques de mesure et hypothèses de travail sont dérivés de ses travaux actuels et antérieurs.

Je suis heureux de rendre hommage à M. Le Professeur Jean WYART, qui a bien voulu accepter de présider mon jury, pour sa bienveillante compréhension à mon égard et plus particulièrement pour l'appui scientifique et moral qu'il m'a apporté.

J'exprime ma reconnaissance à M. Le Professeur Etienne VASSY qui a suivi et encouragé la progression de mon travail en m'apportant l'appui direct de son laboratoire et de ses collaborateurs, principalement Melle. Olga TANAEVSKY.

Je remercie également M. Le Professeur René LUCAS qui a bien voulu s'intéresser à mon travail et faire partie de mon jury.

Enfin, je ne saurais oublier que Mme. Célestine JEHANNO m'a précédé dans cette étude et que je lui dois de fructueuses discussions, ainsi que de nombreux résultats de mesures et toute une instrumentation largement utilisés par la suite : qu'elle veuille bien trouver ici l'expression de ma gratitude.

Ce travail a exigé de multiples prélèvements de poussières et de précipitations, pour lesquels j'ai reçu l'appui constant et la collaboration de la direction et du personnel de nombreux organismes français que je tiens à remercier ici.

Je dois mentionner également l'aide considérable que j'ai trouvée auprès de mes collègues et collaborateurs de Saclay, notamment MM. Roger CHESSELET, Jean-Pierre DUME, Tovy GRJEBINE, Jean SERVANT et Mme Jeanne FOURNIER.

M. Daniel NORDEMANN, en particulier, m'a permis d'obtenir des mesures spectrographiques γ quantitatives.

M. Bruno PARLIER a installé les stations de prélèvements et de mesures des Iles Kerguelen et de Terre Adélie.

M. Benjamin DAVID a participé à la mise au point et à la réalisation des prélèvements en haute altitude ainsi qu'aux mesures de débit et de rendement indispensables à leur exploitation.

Enfin je veux témoigner de ma plus vive reconnaissance envers Melle. Bénédicte ARDOUIN, qui a collaboré directement avec moi à la totalité de ce travail, en assurant notamment le plus grand nombre des mesures de radioactivité.





Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550205_0011

INTRODUCTION

La pollution du milieu ambiant par des rejets industriels ou domestiques a pris depuis plusieurs années un caractère systématique qui risque d'aboutir à une véritable transformation de ce milieu, susceptible d'agir sur l'homme même, à plus ou moins long terme. Cette pollution peut avoir un caractère local : fumées dans certaines vallées industrielles, augmentation de la teneur en oxyde de carbone ou anhydride sulfureux dans les grandes villes, rejets industriels dans l'eau de certaines rivières. Elle peut également concerner l'ensemble du globe, comme c'est le cas de l'élévation, générale, depuis la révolution industrielle, de la teneur de l'atmosphère en gaz carbonique formé à partir de carbone ancien (effet Suess).

Le développement de toutes les formes de l'énergie atomique ne pouvait manquer d'obéir à cette loi générale du développement industriel en posant ses propres problèmes de rejets et effluents de toutes natures.

Il n'est toutefois pas sans intérêt de noter que la majeure partie de la contamination radioactive de l'atmosphère est le fait de quelques explosions nucléaires expérimentales. Ceci illustre l'efficacité des précautions prises dans les autres branches de l'industrie atomique, mais d'autre part souligne le potentiel de pollution de cette nouvelle forme d'énergie, puisque en définitive, de rares injections ont entraîné dans l'atmosphère des concentrations durables en radionuclides artificiels.

La mesure de cette concentration, et l'étude de ses conséquences biologiques, ont incité de nombreux laboratoires à effectuer des mesures systématiques de la concentration, en débris radioactifs, des différentes phases du milieu ambiant : atmosphère, précipitations, sol, etc... On doit noter que la sensibilité des méthodes de détection des nuclides radioactifs est incomparablement plus grande que celle des substances chimiques : elle est de 1 atome sur 10^{18} dans le cas du tritium, elle atteint 1 atome par m^3 d'air dans le cas du Radium B, de période voisine de la demi-heure, soit 1 atome sur $5 \cdot 10^{25}$.

Cette extraordinaire sensibilité a permis de suivre l'évolution de la concentration dans l'atmosphère des diverses substances radioactives artificielles, de déduire les lois générales de leur comportement et d'utiliser ainsi les traceurs radioactifs pour préciser nos connaissances sur la circulation générale de l'atmosphère, et les échanges existant entre les différentes zones de l'atmosphère et la surface du globe. Une seconde étape consiste ensuite à appliquer les résultats scientifiques ainsi obtenus à l'évaluation, et à la prévision, de la contamination du globe par les nuclides radioactifs artificiels.

L'ensemble du travail que nous exposons ci-dessous est consacré à ce double but. Les résultats numériques que nous utiliserons ont été accumulés principalement de 1958 à 1962. Nos études ont porté, durant ces 5 années, sur la plupart des aspects du comportement des aérosols radioactifs artificiels dans l'atmosphère. Les prélèvements d'aérosols ont été effectués dans une trentaine de stations fixes, auxquelles s'ajoutent des prélèvements en bateaux et en ballons. Le dépôt radioactif sur le sol a été collecté dans une soixantaine de stations réparties dans le monde. Près de 50 000 résultats numériques ont ainsi été réunis et dépouillés.

Nos propres mesures sont complétées par un nombre considérable de données publiées dans le monde entier, principalement depuis l'année géophysique internationale (1958). Celles-ci sont parfois difficiles à utiliser, d'abord parce qu'elles portent très souvent sur des échantillons biologiques (végétaux, lait, débris anatomiques) dont la radioactivité n'est pas directement liée à la contamination de l'atmosphère ; ensuite parce que la diversité des techniques de prélèvement et de mesure ne permet pas la comparaison pure et simple des chiffres. Par contre, une littérature scientifique abondante a été consacrée à leur interprétation, particulièrement à partir de 1959. Le dépouillement

bibliographique a été grandement facilité par les travaux du Comité Scientifique des Nations Unies pour l'Etude des Effets de Radiations Ionisantes, constitué dès 1956, et qui a publié en 1958 et 1962 des rapports bibliographiques très complets, comportant notamment d'abondantes données numériques.

Dans une première partie, nous examinerons les conditions dans lesquelles les débris radioactifs artificiels, particulièrement les aérosols, peuvent être utilisés comme traceurs atmosphériques et quels sont les progrès que l'on peut attendre de leur emploi.

La deuxième partie est consacrée à l'étude des aérosols radioactifs au voisinage du sol. Un premier chapitre indique les différentes espèces d'aérosols radioactifs de toutes origines présents dans l'atmosphère et leurs concentrations respectives. On décrit dans un deuxième chapitre les techniques utilisées pour mesurer la radioactivité β globale des aérosols, les difficultés de ces mesures, la précision que l'on peut en attendre, et les mesures systématiques effectuées. Un troisième chapitre est consacré à l'étude de quelques résultats obtenus, concernant le dépôt actif du radon et du thoron mesuré loin de leurs sources émettrices, donc en relation avec la circulation générale en basse atmosphère. Enfin le quatrième chapitre expose l'ensemble des résultats obtenus, et des conclusions que l'on peut en tirer relativement aux processus de transfert entre différentes zones de l'atmosphère.

La troisième partie traite du problème des mesures de ces mêmes aérosols en haute atmosphère (jusqu'à 30 km d'altitude environ). Le premier chapitre expose les buts de ces mesures et les techniques utilisées. Le deuxième chapitre présente les principaux résultats obtenus, et les relie aux considérations les plus générales déjà formulées au quatrième chapitre de la deuxième partie.

La quatrième partie traite du problème très différent de la mesure du dépôt, à la surface du globe, des débris radioactifs artificiels. Un premier chapitre décrit les méthodes et appareils utilisés. Un deuxième chapitre analyse les résultats obtenus afin de mettre en évidence les aspects caractéristiques des différents modes de ce dépôt. Le troisième chapitre présente les résultats numériques obtenus et indique la répartition de ce dépôt en fonction du temps, pour différentes régions du globe, et relie ces nouvelles données aux principaux problèmes exposés précédemment.

Enfin une cinquième partie reprend l'ensemble des problèmes de circulation évoqués auparavant, et tire les conclusions de cette étude.

PREMIÈRE PARTIE

DONNÉES GÉNÉRALES SUR L'ATMOSPHÈRE
ET LES TRACEURS RADIOACTIFS

CHAPITRE I. 1

I - 1 - L'ATMOSPHERE ET LES MOYENS D'ETUDE CLASSIQUES

I - 1/1 - D'une façon générale, les météorologues mesurent essentiellement ce qu'on peut appeler les paramètres thermodynamiques de l'atmosphère : température, pression, degré hygrométrique, leur répartition dans le temps et dans l'espace, et leurs conséquences telles que vitesse et direction des vents, turbulence ou stabilité de l'atmosphère, etc... Ces paramètres sont bien entendu les paramètres fondamentaux de la physique et de la mécanique de l'atmosphère, c'est-à-dire ceux qui résultent des différentes actions qui s'exercent sur l'atmosphère tels que les rayonnements, la rotation de la terre, les phénomènes de marées, etc... Mais justement par suite de leur caractère fondamental, ces paramètres sont les pires traceurs que l'on puisse imaginer, car tout changement dans les actions exercées sur l'atmosphère modifie à fortiori ces paramètres thermodynamiques, interdisant précisément leur emploi comme traceurs. Il semble par exemple bien difficile de distinguer les effets du passage d'une masse d'air froid et humide au dessus du Sahara, de son mélange partiel avec une masse d'air sec et chaud !

Seule la multiplication de mesures soignées, parfois délicates, jointe à la puissance de l'analyse mathématique systématiquement appliquée aux données numériques, a permis de tirer de ces observations la description de la structure de l'atmosphère, de ses mouvements les plus généraux ainsi que leurs altérations éventuelles, et la formulation des lois dynamiques auxquelles elles obéissent.

I - 1/2 - Structure de l'atmosphère.

L'ensemble des mesures de paramètres thermodynamiques, joint à la multiplication des sondages à haute altitude, et à certaines propriétés optiques et radio-électriques de l'atmosphère ont permis de dresser un tableau détaillé de la structure de l'atmosphère et de ses propriétés physiques ou chimiques. Ces résultats sont exposés notamment dans l'article sur l'Aéronomie de l'Encyclopédie de "La Pleiade", dû à M. Nicolet (1959) /N1/ ainsi que dans un ouvrage de langue anglaise de ce même auteur (1960) /N2/. On peut les résumer ainsi :

1° - Par rapport au rayon terrestre, l'épaisseur de l'atmosphère, de l'ordre de 100 km, est très faible : l'atmosphère constitue donc une mince pellicule à la surface de la terre.

2° - La densité de l'air et par suite la pression atmosphérique décroissent de façon approximativement exponentielle jusque vers 100 km d'altitude (figure 1).

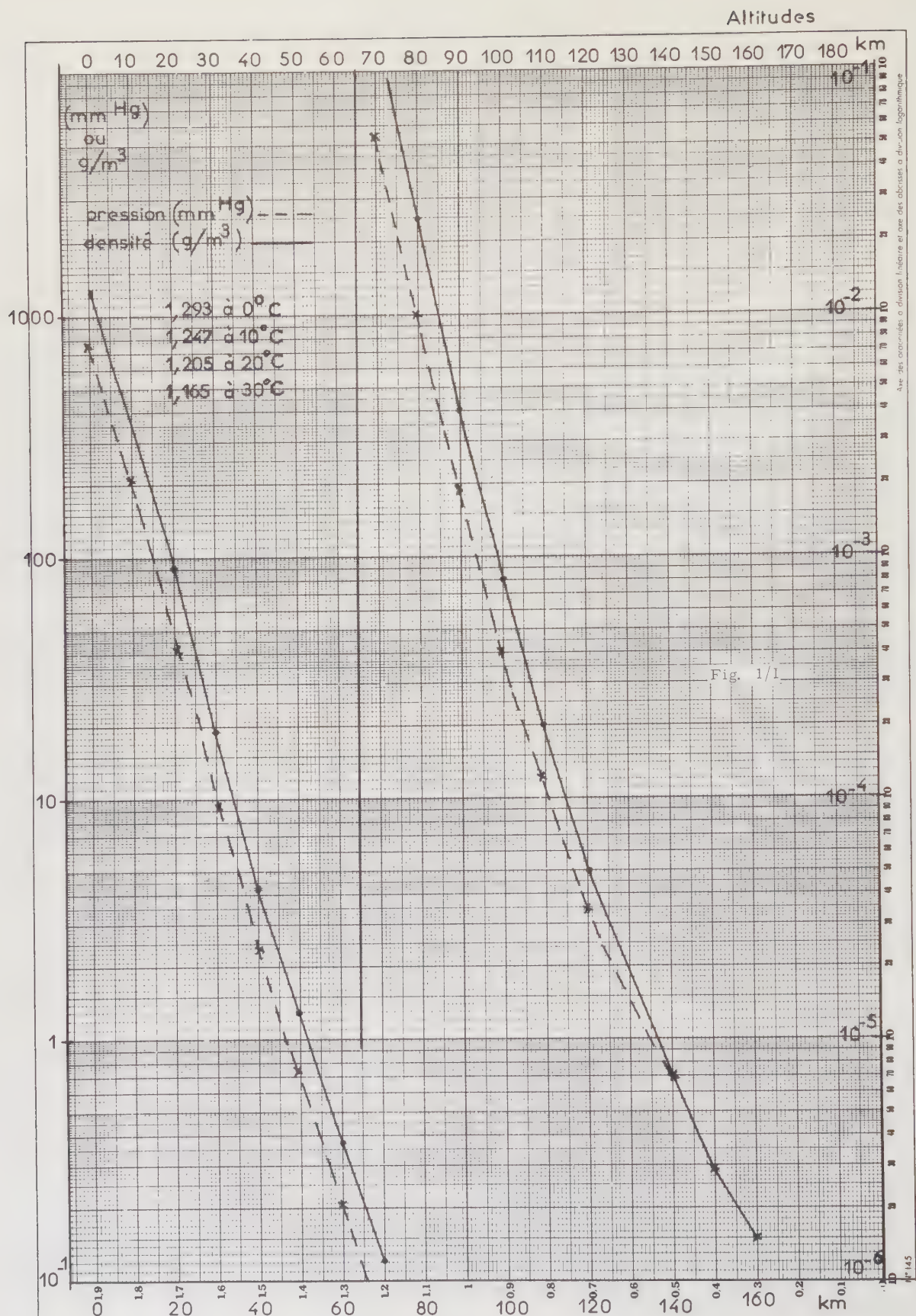
3° - La répartition verticale de la température conduit à distinguer différentes zones (figure 2 /N1/).

La *troposphère* (entre le sol et 6 à 17 km suivant la latitude) siège des hydrométéores, où la température décroît régulièrement jusqu'à la limite supérieure appelée *tropopause*.

La *stratosphère*, où la température d'abord constante s'élève peu à peu jusque vers 50 km (*stratopause*).

Plus haut, on trouve successivement : la *mésosphère* limitée par la *mésopause* vers 85 km, la *thermosphère* limitée par la *thermopause* vers 1000 km. Au delà, dans l'*exosphère*, les propriétés physiques du milieu seraient totalement différentes.

4° - L'étude de la répartition des différentes zones, aux diverses latitudes, montre que leur altitude est assez fluctuante (R. J. Murgatroyd - 1957) /M5/. En particulier la *tropopause* de chaque hémisphère présente toujours deux discontinuités principales entre les *tropopauses* polaire, moyenne et tropicale, associées à l'existence de courants Jets. La figure 3 donne l'allure schématique de cette répartition /A2/.



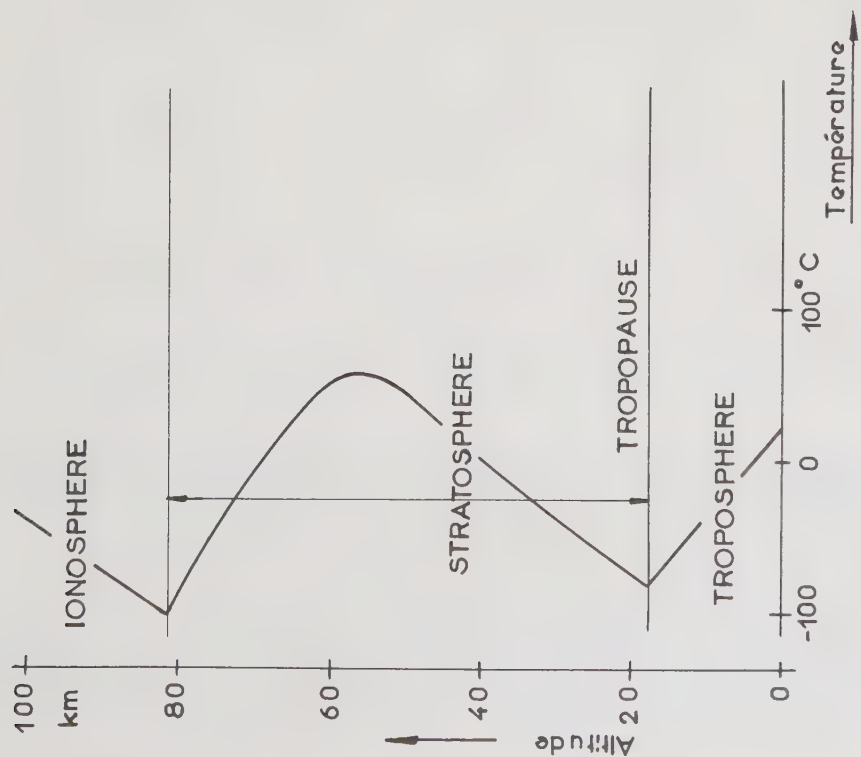


Fig. 2/I - Répartition verticale de la température (Latitude 0)
(D'après M. Nicolet /N1/).

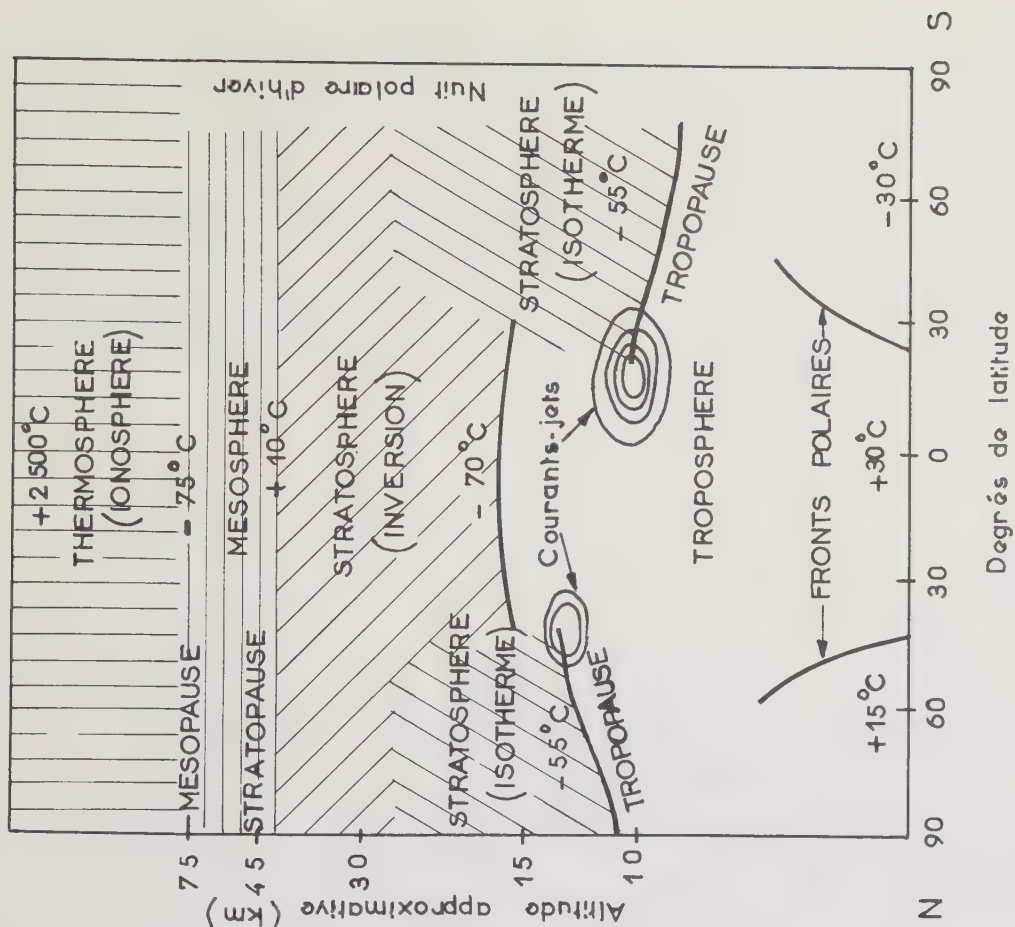


Fig. 3/I - Structure schématique de l'atmosphère en juillet (Extrait du 2e rapport du comité scientifique de l'O. N. U. /A2/).

I - 1/3 - Mouvements et circulation générale de l'atmosphère.

Un exposé général de cette question est fait par P. Queney dans l'article sur les mouvements de l'atmosphère dans l'encyclopédie de la "Pleiade" (1959) /Q1/, tandis que la circulation générale dans la haute troposphère et dans la stratosphère, est traitée par G.D. Barbé /B1/ et par A. Tasson /T2/ (1961).

Cette circulation a pour caractère dominant d'être horizontale et grossièrement zonale. Toutefois à long terme, il y a lieu de considérer les composantes verticales et méridiennes de cette circulation. La figure 4 extraite de l'exposé de Queney montre ainsi la formation de cellules convectives dans la troposphère. D'autre part, des considérations sur le contenu des masses d'air en ozone ou en vapeur d'eau ont amené Brewer (1949) /B12/ et Dobson (1956) /D4/ à formuler l'hypothèse d'une circulation méridienne mettant en jeu des transferts entre stratosphère et troposphère, ascendants dans les régions équatoriales et descendants aux latitudes moyennes, modèle de circulation actuellement très discuté et sur lequel nous reviendrons ultérieurement.

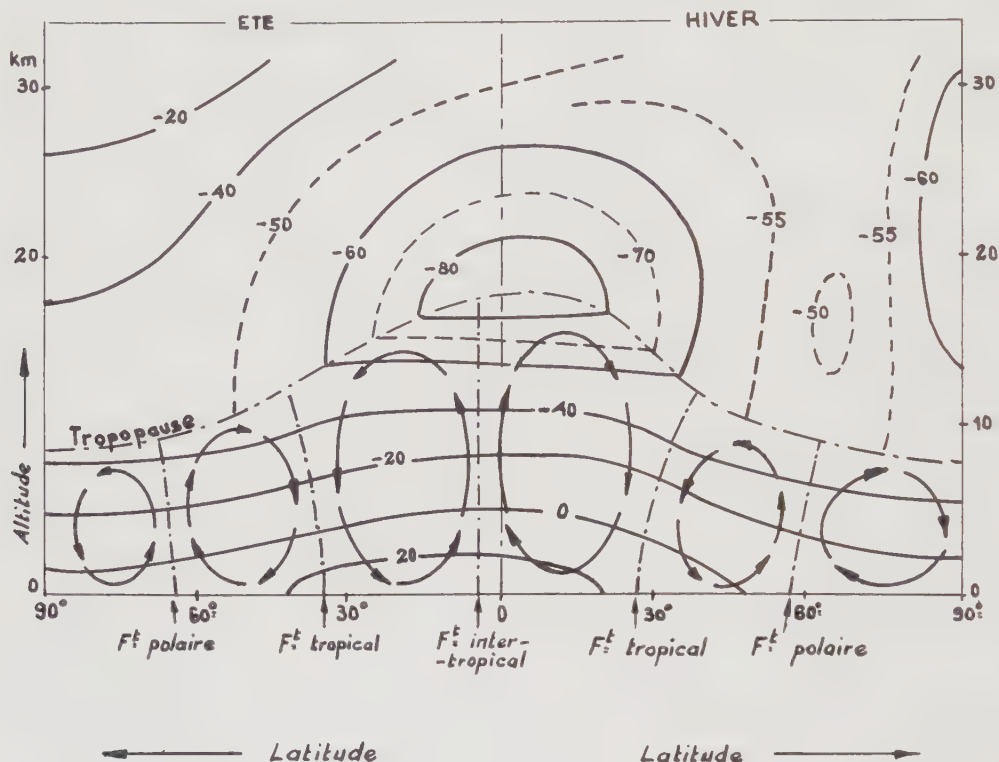


Fig. 4/I - Température moyenne (en °C) et circulation méridienne moyenne en janvier ou juillet (D'après P. Queney /Q1/).

I - 2 - PROGRES A ATTENDRE DE L'UTILISATION DES TRACEURS RADIOACTIFS DANS L'ATMOSPHERE

I - 2/1 - Nous venons de voir que, malgré les discussions auxquelles a donné lieu leur modèle de circulation, Brewer et Dobson avaient fait progresser de façon substantielle les connaissances relatives à la circulation et aux échanges dans l'atmosphère, grâce à l'emploi de traceurs chimiques naturels (vapeur d'eau et ozone). L'emploi de traceurs radioactifs promet d'être beaucoup plus fructueux encore, par suite des possibilités spécifiques et variées qu'ils nous offrent.

Les premiers travaux effectués dans ce sens ont utilisé les gaz et aérosols radioactifs naturels, issus du sol, pour étudier la diffusion atmosphérique à petite échelle. Nous verrons que ces mesures peuvent donner une idée bien définie de la stabilité verticale de l'atmosphère, et plus généralement des coefficients de diffusion turbulente. De la même façon, les panaches radioactifs issus de la cheminée des réacteurs ont déjà permis l'étude expérimentale de divers problèmes de diffusion.

Les nuclides radioactifs naturels d'origine cosmique, qui sont produits essentiellement vers 25 km d'altitude, à un rythme relativement constant permettront d'étudier les vitesses de sédimentation et les transferts stratosphère-troposphère, ainsi que le nettoyage général de la basse atmosphère. La distribution en latitude de ces produits, compte tenu de la répartition en latitude du rayonnement cosmique incident, permettra également l'étude de la diffusion et de la circulation méridiennes.

Enfin les radioéléments artificiels injectés de façon discontinue dans l'atmosphère, doivent permettre un marquage des masses d'air, favorisant les études de circulation, diffusion, transfert de la stratosphère vers la troposphère, etc... De plus, la composition du mélange radioactif permet de définir l'époque de sa formation, améliorant encore les possibilités d'utilisation de ces traceurs.

I - 2/2 - Outre les différences inhérentes à leurs modes de formation et d'injection dans l'atmosphère, les radionuclides présentent des différences de comportements physicochimiques très importantes :

1° - Les gaz diffusent depuis leur zone de formation, et leur accumulation dans l'atmosphère est limitée principalement par les processus radioactifs, ou physicochimiques tels que :

- transformation en aérosols par radioactivité et élimination (voir plus loin). C'est le cas du radon, du thoron et des produits de fission gazeux,

- oxydation puis condensation de l'oxyde et précipitation. C'est le cas du tritium,

- absorption chimique, en particulier par des organismes vivants. C'est le cas du carbone-14 sous forme de CO_2 ,

- dissolution dans l'eau des précipitations, des rivières et des lacs ou océans. C'est également le cas du Carbone 14 sous forme de CO_2 .

- certains, comme le krypton-85, ne semblent pas disparaître de l'atmosphère autrement que par leur propre désintégration radioactive /D3/.

2° - Les aérosols, au contraire, subissent divers processus physiques intenses de nettoyage de l'atmosphère : action du champ électrique terrestre sur les aérosols ionisés, coalescence puis décantation sèche, et surtout entraînement par les précipitations /F3//G5//L1/.

Cette différence de comportement fait que le temps moyen de résidence dans l'atmosphère des gaz radioactifs de période suffisamment longue se chiffre en années (de l'ordre de grandeur de 10 ans pour le CO_2 /C8/) alors que la durée de demi-vie des aérosols dans la troposphère est de l'ordre de 1 jour pour des aérosols formés dans les plus basses couches de l'atmosphère /L15//H3//L17/ atteint 20 jours pour les aérosols radioactifs artificiels /S12/ et environ 35 jours pour les aérosols radioactifs naturels d'origine cosmique /G3//L5/.

Les gaz radioactifs pourront donc s'accumuler dans l'atmosphère et leur concentration, relativement homogène, variera lentement /B5//D3/. La concentration des aérosols radioactifs dans la basse atmosphère, au contraire, subira des variations considérables d'un lieu à un autre et en fonction du temps, suivant les fluctuations des processus d'injection dans la basse atmosphère et des facteurs géophysiques ou météorologiques de nettoyage /L11/.

I - 2/3 - Nous voyons donc que, contrairement à ce qu'il était logique de penser, les aérosols radioactifs sont susceptibles de constituer un meilleur traceur atmosphérique, l'individualité des masses d'air étant davantage mise en lumière ainsi, que par les gaz radioactifs qui finissent par former un fonds continu non négligeable. Toutefois, l'utilisation des aérosols pour le marquage des masses d'air suppose que leurs mouvements propres, en tant que particules individuelles, sont négligeables par rapport au mouvement des masses d'air.

D'après la loi de Stokes, qui constitue une bonne approximation, les vitesses de chute des poussières sont fonction de la granulométrie et de la densité de l'air. Le tableau I résume quelques données à cet égard.

Tableau I

Vitesse de chute de différentes particules de densité
égale à 1 à différentes altitudes
(mètres par jour)
D'après Benarie /B4/

Altitudes	Vitesse de chute des particules de Φ		
	0,1 μ	1 μ	10 μ
32 km	5,2	56	735
17 km	0,43	8	300
0 km	0,08	2,8	260

On voit que, dans la troposphère, les vitesses propres de chute des aérosols radioactifs (dont la granulométrie est généralement inférieure au micron) seront toujours négligeables. Dans la stratosphère par contre, les vitesses de sédimentation commencent à ne pas être négligeables, vis-à-vis des composantes verticales généralement faibles de la circulation.

Un autre caractère qui distingue le comportement des aérosols et celui des gaz est l'absorption différente des rayonnements qui aboutit en principe au fait que la température des aérosols est plus élevée que celle du gaz qui les contient. Des travaux théoriques importants ont été consacrés à ce problème /A3/ sans que les mesures expérimentales aient jamais permis de mettre en évidence des différences entre le mouvement des aérosols et celui des masses d'air qui les contiennent. De toute façon, la présence permanente d'aérosols dans la stratosphère et dans la troposphère rend, en principe, négligeables les effets de la présence supplémentaire des aérosols provenant des explosions nucléaires.

Ces diverses considérations font que dans l'ensemble du travail que nous exposons ci-après, la majeure partie des mesures a été consacrée aux aérosols radioactifs, principalement d'origine artificielle, et que, à l'exception des études relatives aux processus de nettoyage, et compte tenu de leur effet, nous avons assimilé les mouvements des aérosols à ceux des masses d'air de l'atmosphère.

DEUXIÈME PARTIE

LES AÉROSOLS RADIOACTIFS
DANS LA BASSE ATMOSPHÈRE

CHAPITRE II. 1

AEROSOLS RADIOACTIFS PRESENTS DANS L'ATMOSPHERE

II - 1/1 - ORIGINE DES AEROSOLS RADIOACTIFS

Les aérosols radioactifs présents dans l'atmosphère peuvent avoir, ainsi que nous l'avons indiqué, les origines les plus diverses : d'une façon générale on peut distinguer les nuclides radioactifs présents à l'état naturel dans l'atmosphère, et ceux dont la présence résulte de la contamination de l'atmosphère en effluents radioactifs et débris d'explosions nucléaires. Cette distinction, bien que dépourvue de caractère physique, est justifiée par les différences très importantes entre le comportement, les ordres de grandeur des périodes radioactives et les concentrations habituelles, des aérosols radioactifs naturels et artificiels et, il ne faut pas l'oublier, leur nocivité.

On peut, plus précisément, à l'intérieur de ces deux grandes catégories, classer les aérosols radioactifs suivant leur origine ou leur mode d'injection dans la basse atmosphère. On obtient ainsi le tableau suivant :

Tableau I

Classification des aérosols radioactifs présents dans la basse atmosphère suivant leur origine

A - Aérosols radioactifs naturels
a) <i>Fragments de roches radioactives mis en suspension</i>
b) <i>Produits de désintégration des éléments radioactifs naturels gazeux, ayant diffusé dans le sol (dépôt actif du radon, du thoron et de l'actinon).</i>
c) <i>Produits de l'action du rayonnement cosmique sur les nuclides constituant la haute atmosphère (Produits de spallation).</i>
B - Aérosols radioactifs artificiels
a) <i>Effluents des réacteurs nucléaires.</i>
b) <i>Produits de fission provenant des explosions nucléaires</i>
c) <i>Produits d'activation provenant des explosions nucléaires</i>
d) <i>Matières fissiles résidus des explosions nucléaires</i>

Nous allons examiner successivement ces différentes catégories d'aérosols, en indiquant les modes d'injection et le comportement atmosphérique qui les caractérisent, ainsi que les concentrations observables, en particulier en France.

II - 1/2 - FRAGMENTS DE ROCHES EN SUSPENSION

Presque toutes les roches de l'écorce terrestre contiennent, au moins à l'état de traces, des produits radioactifs naturels, c'est-à-dire essentiellement, des produits appartenant aux familles de l'uranium, du thorium, de l'actinium, et l'isotope 40 du potassium. Par conséquent les poussières minérales seront toutes radioactives, bien qu'à des degrés divers.

Les plantes pouvant contenir également de l'uranium, du thorium ou du potassium, certaines poussières végétales peuvent également être radioactives. Toutefois, la caractéristique essentielle

de ces nuclides radioactifs naturels étant leur période extrêmement longue (de l'ordre du milliard d'années), les teneurs usuelles des roches ne sont pas suffisantes pour permettre à ces poussières d'avoir une radioactivité décelable (exception faite pour les installations minières). De plus, les dimensions des poussières soulevées par le vent sont en général si élevées que celles-ci ne peuvent rester longtemps en suspension et par conséquent ne s'accumulent pas dans l'atmosphère. Quelques cas particuliers pourtant doivent être retenus :

1° - Au voisinage immédiat de gisements d'uranium et de thorium, et de certaines installations de traitements de ces minerais, des teneurs non négligeables peuvent être observées.

2° - Les vents de sables, dans les régions désertiques, peuvent entraîner extrêmement loin de leur lieu d'origine, et en concentration très importante, des poussières extrêmement fines. La présence dans certaines zones désertiques (Sahara) de couches très fines mais très étendues de sables thorifères ou uranifères, rend possible la contamination de l'atmosphère à des doses décelables.

3° - Le potassium 40 peut être suffisamment abondant dans certaines roches pour que sa concentration atmosphérique devienne, à la limite, mesurable. En particulier, l'eau de mer contient 330 picocuries par litre de potassium 40/P4/, et les embruns abandonnent dans l'atmosphère une quantité importante de sel marin, que l'on peut retrouver ensuite très loin à l'intérieur des terres. La concentration atmosphérique en sel marin sec a été estimée de 0,07 à 0,5 mg par m³/J1/. Si l'on tient compte de ce que la teneur moyenne de l'eau de mer en sel marin est de 35 g/litre, on trouve que les aérosols de potassium 40 d'origine marine représentent de 0,0007 à 0,005 picocuries par m³.

Ainsi, au cours de la deuxième campagne du "Norsel" une très petite partie de la radioactivité des aérosols prélevés pouvait être imputée au potassium 40 des embruns /A8/. Toutefois, dans le cas général, la contribution à la radioactivité atmosphérique des constituants radioactifs du sol est totalement négligeable.

II - 1/3 - PRODUITS DE DESINTEGRATIONS DES ELEMENTS RADIOACTIFS NATURELS GAZEUX

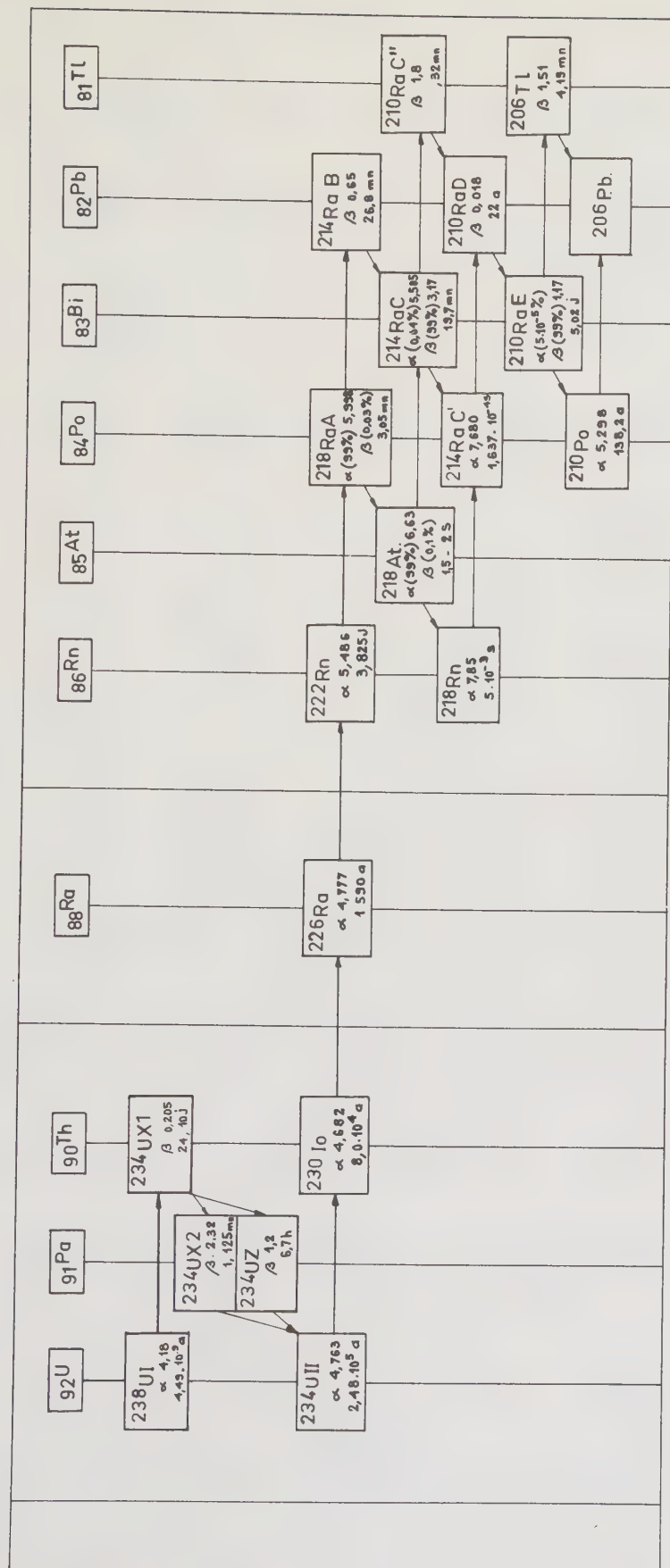
Les trois familles radioactives de l'uranium, du thorium et de l'actinium, possèdent toutes un descendant qui est un isotope de l'élément 86, baptisé d'une façon générale radon, bien que ce nom caractérise particulièrement l'isotope 222, ou "émanation du radium". Cet élément qui est le plus lourd des gaz rares prend le nom de "thoron", dans le cas de l'isotope 220, descendant du thorium X ($^{224}_{88}\text{Ra}$) et d'"actinon", dans le cas de l'isotope 219, descendant de l'actinium X ($^{223}_{88}\text{Ra}$). La chaîne complète des désintégrations est indiquée figures 1, 2 et 3.

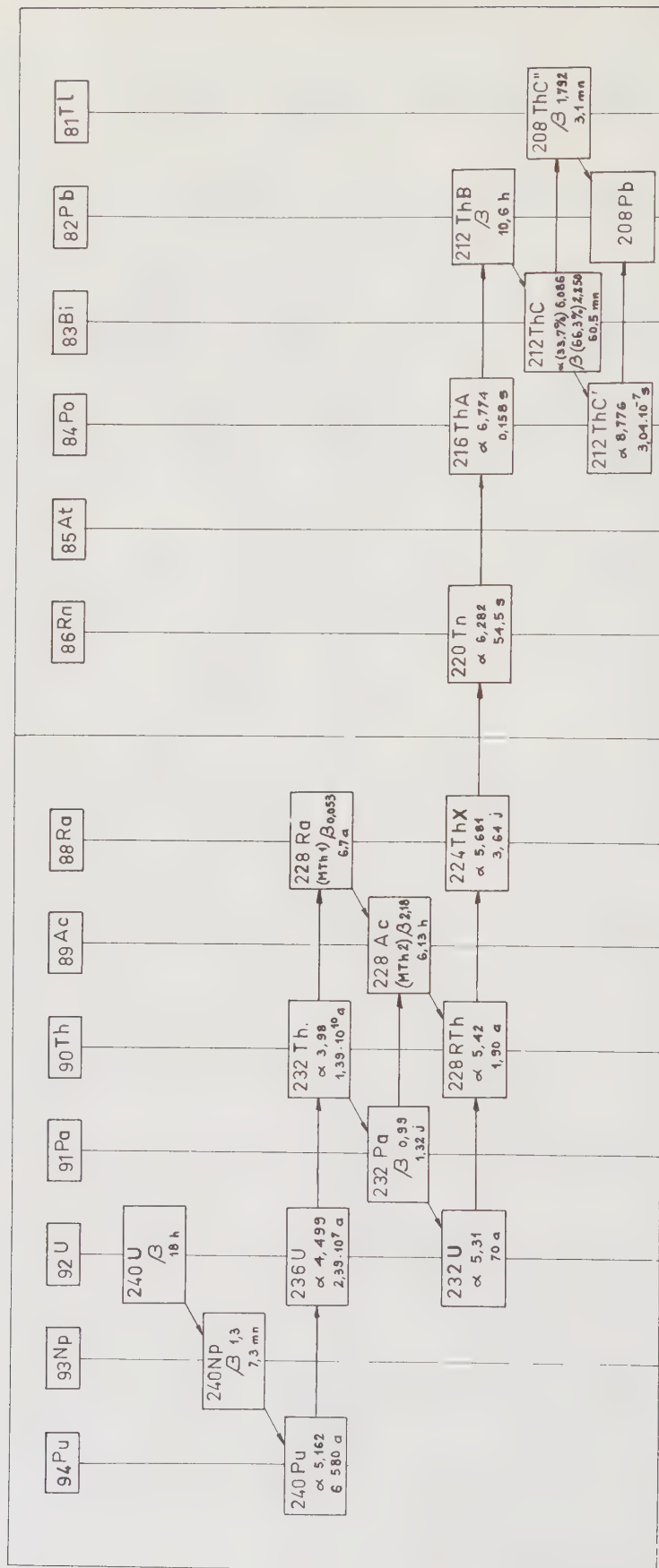
Cet élément gazeux est susceptible de diffuser, depuis le lieu de sa formation, jusqu'à l'atmosphère libre, à travers les innombrables microfissures des roches, pour y donner naissance par désintégration α , à une gamme de descendants, indiqués sur les figures 1 à 3, et qui ne sont autres que des métaux lourds : polonium, bismuth, plomb et thallium, solides à la température ordinaire, donc présents dans l'atmosphère sous forme d'aérosols.

Notons tout de suite que la faible teneur des roches en actinium, jointe à la très courte période de l'actinon (environ 3 secondes) qui lui interdit pratiquement de diffuser à travers le sol avant sa désintégration, aboutissent au fait que la concentration atmosphérique de ses descendants est extrêmement faible, et qu'on pourra toujours négliger leur contribution à la radioactivité atmosphérique. Le radon, le thoron et leurs descendants, au contraire, sont responsables de la majeure partie de la radioactivité présente dans l'atmosphère.

II - 1/3.1 - Le radon et son dépôt actif dans l'atmosphère.

Premier découvert, et aussi le plus répandu dans l'atmosphère, le radon a donné lieu à de nombreuses études. Israël a montré que le radon présent dans l'atmosphère provient essentiellement du sol /11/. Labeyrie a montré que les aérosols ultrafins (monoatomiques) du dépôt actif du radon, étaient très rapidement fixés par des aérosols plus gros qui les "stabilisaient" dans l'atmosphère, en empêchant les champs électriques terrestres de les précipiter au sol, leur mobilité étant considérablement amoindrie /L1/. Servant a mesuré le taux de dégagement du sol, compris entre 2 et 140 10^{-18} curies/cm². sec, et indiqué que le degré d'humidité ou de gel du sol influait considérablement sur le taux de dégagement /S1/. Servant et Tanaevsky /S2/ ont étudié de 1955 à 1960 la concentration atmosphérique du radon, qu'ils ont trouvée, en moyenne, égale à 10^{-10} curies par m³, dans la région parisienne, en accord avec de nombreuses mesures internationales, et ont souligné que les facteurs météorologiques influent particulièrement sur cette concentration : lorsque l'atmosphère est très stable, en particulier, au cours d'une forte inversion de température, la





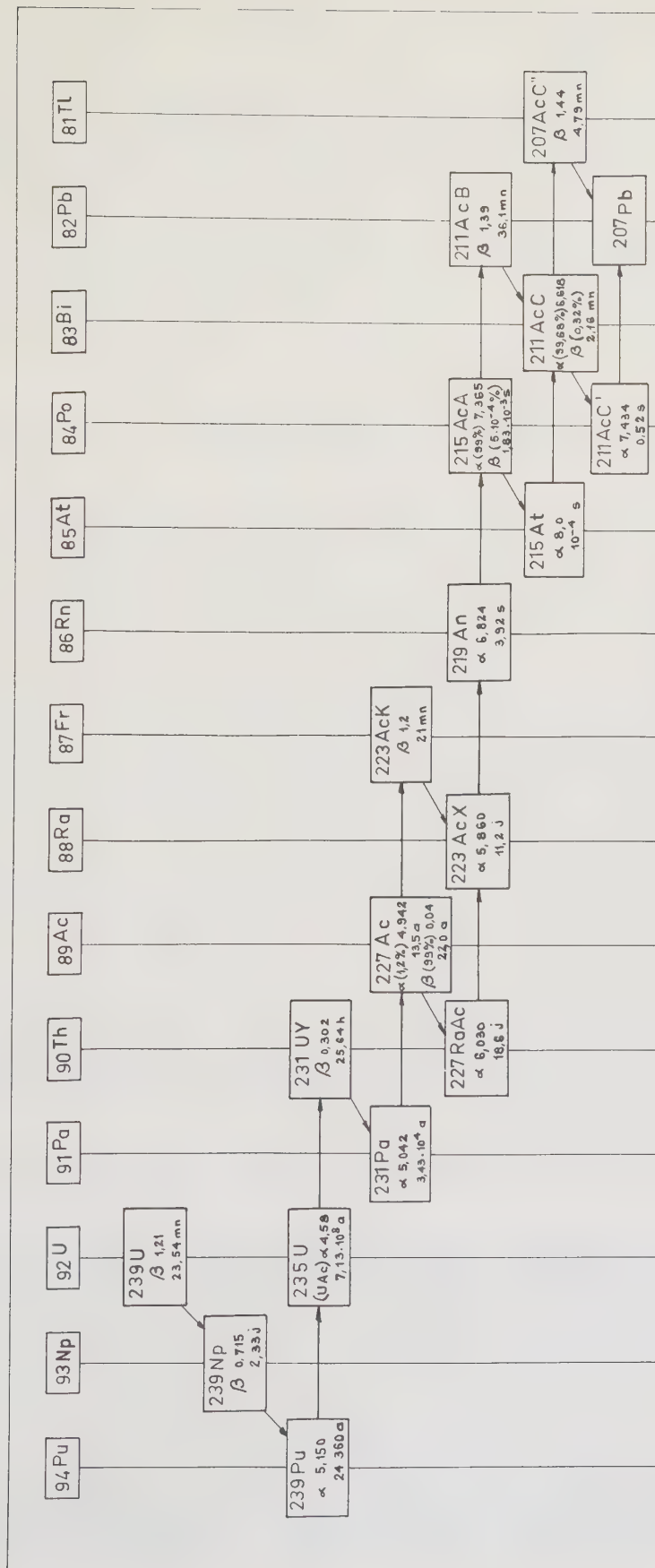


Fig. 3/II. 1



Fig. 4/II.1 - Variation de la concentration du radon avec l'altitude, le 12 juillet 1960 (D'après J. Servant/S3/).

concentration du radon peut être 10 à 100 fois plus élevée, le radon qui sort du sol restant confiné dans les plus basses couches de l'atmosphère. Servant a montré en particulier, au moyen de mesures effectuées le long du pylône météorologique du C. E. N. Saclay, que les plus fortes concentrations rencontrées lors d'inversions de température bien marquées, décroissaient très brutalement, au delà de quelques dizaines de mètres d'altitude, ainsi que le montrent les courbes de la figure 4/S3/, résultat qui confirme les mesures effectuées par Tanaevsky et Vassy aux niveaux des pieds et du sommet de la Tour Eiffel à Paris /T1/. Enfin, Servant d'une part /S1/S3/ et Fontan et coll. d'autre part /F4/, ont étudié l'équilibre radioactif entre le radon et ses descendants, et indiqué que dans de nombreux cas, cet équilibre n'était pas réalisé, en particulier par excès de la concentration du radon sur celle de son dépôt actif.

La période relativement longue du radon (3,8 jours) lui permet dans une certaine mesure de diffuser depuis le sol jusqu'à des régions qui devraient en être dépourvues : atmosphère au-dessus des océans, où on ne trouve presque jamais moins de 1 picocurie/m³, ainsi que nous le verrons au

chapitre II-3 et haute atmosphère, où Machta et Lucas ont pu le déceler et indiquer des concentrations de 0,1 à 8 pCi/m³ /M3/.

Si les premiers descendants du radon ont des périodes relativement courtes, inférieures à la demi-heure, qui expliquent que l'équilibre radioactif puisse souvent se réaliser entre le radon gazeux et ses descendants solides, à partir du radium D (⁸⁸₂₁₀Pb), de période 22 ans, on se trouve en présence d'une nouvelle chaîne de désintégrations.

Cette longue période fait que le radium D subit les processus de nettoyage de l'atmosphère et que la quasi-totalité du radium D émis par le sol, par l'intermédiaire du radon, se retrouve dans les précipitations, où sa teneur moyenne est de l'ordre de 2 picocuries/litres /G4/. La concentration atmosphérique observée est donc très faible et peut être estimée de 0,001 à 0,015 picocuries /m³/B10/, /B13/, /G9/. Toutefois, l'importance des processus de nettoyage joue également sur les descendants du radium D, qui accusent des concentrations nettement inférieures /B13/.

II - 1/3.2 - Le thoron et son dépôt actif dans l'atmosphère.

Trois différences fondamentales distinguent du radon le thoron et sa chaîne de descendants :

1° - La période du thoron, de 54 secondes environ, ne lui donne pas le temps de diffuser à travers le sol, de façon appréciable. La quantité de thoron issue du sol par unité de surface est donc certainement très inférieure à celle du radon, même pour une activité spécifique analogue des roches en radium et en thorium X. Accessoirement, cette période est du reste si courte que les mesures du thoron proprement dit sont extrêmement difficiles et que la plupart des auteurs ayant abordé ce sujet se sont contentés de mesurer les descendants de plus longue période (thorium B et C).

Si l'on a encore peu de données sur le dégagement du sol en thoron, par contre Fontan et coll. /F4/ ont mis au point un appareil permettant le dosage continu du thoron et ont constaté que ce gaz se trouvait pratiquement toujours obéir aux conditions rencontrées au cours des inversions de température dans le cas du radon, c'est-à-dire que pour de simples raisons cinétiques (et non dynamiques comme c'est le cas lors des inversions de température) la majeure partie du thoron reste concentrée au voisinage immédiat du sol : un fort gradient existe donc dans les tout premiers mètres de l'atmosphère.

La diffusion horizontale n'est pas très importante non plus, et dès qu'on s'éloigne un peu des continents, nous avons montré que le niveau du thoron et même du thorium B décroît très rapidement en dessous de 10⁻¹⁵ Ci/m³/B8/.

2° - La période du thorium A (0,15 seconde) est bien plus faible que celle du thoron, situation qui rappelle le cas du radon et du radium A. Par contre, le thorium B a lui une période beaucoup plus longue, de 10,6 heures. C'est donc en général le thorium B qui diffusera, dans l'atmosphère, tout à fait indépendamment du thoron, et qui fixera la période de décroissance des éléments suivants. On ne doit donc pas s'attendre à observer des concentrations de thoron et de son dépôt actif aussi proches de l'équilibre que dans le cas du radon. Et de fait, Fontan et coll. ont trouvé que, au voisinage du sol, la concentration du dépôt actif était souvent 100 fois plus faible que celle du thoron /F4/.

3° - Le thorium D est stable, et ne donne lieu à aucun prolongement de la chaîne, comparable à celui des radiums D, E et F.

Compte tenu des différences que nous venons d'indiquer, il n'est pas surprenant que la plupart des mesures de concentration atmosphérique publiées concernent le dépôt actif du thoron. La concentration moyenne est en France de 2 à 3 pCi/m³, avec des valeurs extrêmes de 1 et 20 pCi/m³ /J2/.

En ce qui concerne le thoron proprement dit, Fontan et coll. indiquent au voisinage immédiat du sol des concentrations analogues à celles rencontrées pour le radon et comprises entre 50 et 1 600 pCi/m³ /F4/.

II - 1/4 - PRODUITS DE L'ACTION DU RAYONNEMENT COSMIQUE

Le rayonnement cosmique de haute énergie est susceptible de provoquer des réactions nucléaires particulières (réactions de spallation). La caractéristique essentielle des produits formés est d'avoir une masse atomique inférieure ou égale à 40, masse atomique du plus lourd isotope stable de l'ar-

gon, c'est-à-dire nuclide le plus lourd de ceux qui entrent dans la composition de l'atmosphère autrement qu'à l'état de trace.

La principale zone de formation de ces produits de spallation se situe entre 20 et 25 km d'altitude, c'est-à-dire suffisamment haut pour que le rayonnement cosmique n'ait pas encore été absorbé de façon sensible par l'atmosphère, et pas assez pour que la raréfaction de l'air rende les réactions improbables.

Compte tenu du temps nécessaire à ces produits pour atteindre la troposphère, seuls présentent de l'intérêt pour nous ceux qui ont une période suffisante pour qu'on puisse les rencontrer en concentration non négligeable à basse altitude. On peut actuellement dresser la liste suivante :

1° - Ont déjà été découverts :

Tritium	H 3	de période 12,26 A
Beryllium	Be 7	de période 53,6 j.
Beryllium	Be 10	de période 2,5. 10 ⁶ A.
Carbone	C 14	de période 5 568 A.
Sodium	Na 22	de période 2,58 A.
Silicium	Si 32	de période 710 A.
Phosphore	P 32	de période 14,2 j.
Phosphore	P 33	de période 24,4 j.
Soufre	S 35	de période 87 j.
Chlore	Cl 35	de période 55 minutes.

2° - On soupçonne également la formation du fluor 18, sodium 24, magnésium 28, aluminium 26, chlore 36, argon 37 et 39, potassium 40.

L'importance de ces diverses substances, en particulier du carbone 14, est considérable en géophysique et en géochronologie. Toutefois, les deux principales d'entre elles sont présentes dans l'atmosphère essentiellement à l'état gazeux : le carbone 14, sous forme de CO₂, et le tritium sous forme de gaz, ou de vapeur d'eau. Leur étude est particulière et leur contribution à la radioactivité atmosphérique doit être recherchée spécialement, en raison de leur rayonnement β particulièrement mou (18 KeV pour le tritium et 155 KeV pour le carbone 14).

Les deux substances les plus abondantes sont ensuite le beryllium 7 et le phosphore 32, pour lesquelles on a indiqué, au niveau du sol, des concentrations respectives de 0,02 à 0,3 pCi/m³ et inférieures à 0,01 pCi/m³/G9/, /R1/, /S9/. De toute façon, le beryllium 7, qui se transforme en lithium 7 par capture électronique avec, dans 11 % des cas, émission d'un rayonnement γ de 477 KeV, ne contribue pas à la radioactivité atmosphérique β . Le phosphore 32 et les autres produits de spallation sont trop rares pour pouvoir être décelés autrement que après des séparations radiochimiques très soignées.

On doit noter, bien que, en définitive, toute cette catégorie d'aérosols radioactifs n'intervienne pas en principe dans les mesures que nous décrirons par la suite, que les concentrations naturelles de 3 au moins de ces substances ont été affectées par les entreprises humaines :

1° - Le carbone 14 a vu décroître sa teneur relative au début du siècle, par suite de l'augmentation consécutive au machinisme, du gaz carbonique formé à partir de carbone très ancien (effet Suess). A partir de 1952, les explosions nucléaires utilisant la fusion ont contribué puissamment à la formation de carbone 14, ce qui a abouti à un net enrichissement de l'atmosphère en ce nuclide (60 % de 1954 à 1962) /L13/. Les réacteurs nucléaires à refroidissement par air contribuent également pour une part importantes à sa formation. Sa longue période permet son accumulation dans l'atmosphère, et ses propriétés biochimiques en font un des radionuclides les plus dangereux.

2° - Le tritium est également formé dans les réactions de fusion, et sa concentration atmosphérique a été multipliée par un facteur 100 de 1954 à 1962 /B6/.

3° - Enfin tout dernièrement, Bleichrodt a émis l'hypothèse que du beryllium 7 pouvait être produit dans les explosions nucléaires /B9/. Son raisonnement est fondé sur le parallélisme de l'ac-

croissement lors des explosions nucléaires de la concentration du béryllium 7, et du strontium 89, produit de fission dont la période est extrêmement voisine. Du béryllium 10 pourrait également être produit de la même façon.

II - 1/5 - NOUS POUVONS DONC RESUMER AINSI LA COMPOSITION DE L'ATMOSPHERE EN AEROSOLS RADIOACTIFS NATURELS :

Tableau II
Principaux aérosols radioactifs naturels présents dans l'atmosphère

Nuclides	Types de radioactivité	Périodes	Mode d'injection dans la basse atmosphère	Concentrations observées (en France) pCi/ m ³
Dépôt actif du radon à vie courte Radium A, B, C, C', C"	α, β, γ	< 26,8 m	Désintégration du radon présent dans l'atmosphère	30 à 3 000 (moyenne 100 à 200)
Dépôt actif du radon à vie longue Radium D, E, F	α, β, γ	fixée par le Ra D à 22 ans	d°	0,001 à 0,015
Dépôt actif du thoron Thorium A, B, C, C', C"	α, β, γ	< 10,64 h	Désintégration du thoron présent dans l'atmosphère	1 à 20 (moyenne 2 à 3)
Potassium 40	β, γ	1,25. 10 ⁹ A	Embruns marins poussières minérales	0,0007 à 0,005
Poussières minérales contenant de l'uranium ou du thorium	α, β, γ	longue	Poussières atmosphériques	négligeable en général
Béryllium 7	γ	53 jours	Décantation depuis la stratosphère	0,02 à 0,3
Phosphore 32 et autres produits de spallation	β, γ	55 min. à 2,5. 10 ⁶ A	d°	< 0,01

II - 1/6 - EFFLUENTS DES REACTEURS NUCLEAIRES

Les réacteurs sont construits, en principe, de façon à ne pas introduire d'aérosols radioactifs artificiels dans l'atmosphère. L'air servant éventuellement au refroidissement est soigneusement dépoussiéré à l'entrée, pour éviter l'activation des particules solides, et strictement filtré à la sortie, pour retenir tous les aérosols qui auraient pu se former à l'intérieur du réacteur. Toutefois, l'ensemble de ces précautions ne suffit pas à interdire complètement la contamination de l'atmosphère : en effet un certain nombre de produits de fission, susceptibles de s'échapper du réacteur, sont gazeux et peuvent diffuser à partir des barreaux de combustible. Ils ne sont pas retenus par les filtres, si soignés soient-ils. D'autre part, l'air de refroidissement peut s'activer et donner également naissance à des produits gazeux (en particulier argon 41 et carbone 14 sous forme de CO₂) dont on peut déterminer la concentration autour de la cheminée du réacteur /J3/, /J4/, /L14/. Certains des produits gazeux ainsi formés et passés dans l'atmosphère peuvent par désintégration donner naissance à une chaîne de descendants solides, un peu comme dans le cas du radon. Enfin

des éléments solides ou liquides, comme l'iode et le brome, peuvent traverser les installations de filtration à l'état de vapeur. La liste ci-dessous n'est pas limitative, mais indique les principaux produits formés.

Tableau III

Aérosols radioactifs artificiels descendants de produits gazeux ou à forte tension de vapeur
(Les chiffres en-dessous indiquent la période radioactive)

Masse atomique	Eléments gazeux	Descendants solides
83	Br $\longrightarrow$ Kr 2,3 h 114 m	
84	Br 31,8 m	
85	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ Kr 3 m. 4,36 h 10,3 A	
86	Br 32 S	
87	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 55,6 S 78 m	Rb 5. 10 ¹⁰ A
88	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 15,5 S 2,77 h	Rb $\longrightarrow$ Sr 17,8 m 3. 10 ¹⁶ A
89	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 4,51 S 3,18 m	Rb $\longrightarrow$ Sr 15,4 m 50,5 j
90	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 1,4 S 33 S	Rb $\longrightarrow$ Sr $\longrightarrow$ Y 2,7 m 27,7 A 64,2 h
91	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 2 S 9,8 S	Rb 42,5 S $\searrow$ Rb 14 m $\nearrow$ Sr 9,67 h $\longrightarrow$ Y 50,3 m $\longrightarrow$ Y 57 j
92	Br $\longrightarrow$ Kr $\longrightarrow$ 1,5 S 3 S	Rb $\longrightarrow$ Sr $\longrightarrow$ Y 80 S 2,6 h 3,6 h
93	Kr $\longrightarrow$ 2 S	Rb $\longrightarrow$ Sr $\longrightarrow$ Y $\longrightarrow$ Zr 7 S 8,2 m 10,4 h 1,1. 10 ⁶ A
94	Kr $\longrightarrow$ 1,4 S	Rb $\longrightarrow$ Sr $\longrightarrow$ Y 3 S 1,3 m 16,5 m
95	Kr $\longrightarrow$ 1 S	Rb $\longrightarrow$ Sr $\longrightarrow$ Y $\longrightarrow$ Zr $\longrightarrow$ Nb $\longrightarrow$ Nb 2 S 42 S 10,5 m 65 j 90 h 35 j
129	I 3. 10 ⁷ A	
130	I 12,6 h	
131	I $\longrightarrow$ Xe 8,1 j 12 j	

Masse atomique	Eléments gazeux	Descendants solides
132	I 2,26 h	
133	I → Xe → Xe 20,8 h 2,3 j 5,27 j	
134	I 52,5 m	
135	I → Xe → Xe → 6,68 h 15,6 m 9,13 h	Cs 3. 10 ⁶ A
136	I 86 S	
137	I → Xe → 22 s 9,9 m	Cs → Ba 26,6 A 2,60 m
138	I → Xe → 5,9 s 17 m	Cs → Ba 32,2 m 10 ¹⁵ A
139	I → Xe → 2,7 S 41 S	Cs → Ba 9,5 m 84 m
140	Xe → 16 S	Cs → Ba → Ca 66 S 12,8 j 40,22 h
141	Xe → 1,7 S	Cs → Ba → La → Ce → Pr 9 S 18 m 3,8 h 33,1 j 2.10 ¹⁶ A
142	Xe → 1,5 S	Cs → Ba → La → Ce → Ba ¹³⁸ 1 m 6 m 77 m 5. 10 ¹⁵ A 10 ¹⁵ A

On constate sur le tableau III ci-dessus, qu'un très grand nombre de produits de fission descendent de produits gazeux et peuvent être décelés au voisinage de certains réacteurs. La plupart d'entre eux ont des périodes très courtes, et ne se retrouvent qu'au voisinage immédiat du réacteur : leur activité risque d'y être importante, en raison de l'absence de diffusion. Toutefois, la distinction entre ces produits et les descendants du radon s'avère très délicate. Quelques-uns, tels le strontium 89, strontium-yttrium 90, strontium-yttrium 91, yttrium 93, zirconium-niobium 95, césium-baryum 137, baryum-lanthane 140, ont des périodes longues, qui leur permettent de se répandre dans l'atmosphère, loin de leur lieu d'émission. Inversement, leur concentration atmosphérique et leur activité seront d'autant plus faibles. Leur activité est finalement négligeable devant celle des débris radioactifs, de même constitution atomique, introduits dans l'atmosphère par les explosions nucléaires. Toutefois, en cas de cessation des essais et de forte décroissance de la radioactivité artificielle atmosphérique, ces produits des réacteurs ne devraient plus être négligés. Notons que la différence essentielle entre les aérosols radioactifs introduits dans l'atmosphère par les réacteurs et par les explosions consiste dans le fait que seuls les seconds, qui sont dans une large mesure injectés dans la stratosphère, sont susceptibles de s'accumuler, alors que les premiers subissent le nettoyage intense de la basse atmosphère que nous avons signalé. Une excellente preuve en est donnée par le fait que le krypton 85, produit de fission gazeux à longue période (10,3 A), contrairement au cas des aérosols, est accumulé dans l'atmosphère de façon non négligeable par les réacteurs nucléaires /D3/.

Un certain nombre d'incidents peuvent renforcer considérablement l'émission d'aérosols dans l'atmosphère par les réacteurs : parmi les incidents minimes, il faut citer la combustion ou la détérioration des filtres de sortie, et également les ruptures de gaines. D'autres incidents sont plus graves, tel celui survenu à Windscale en Octobre 1957 et dont les produits de fission, parmi lesquels l'iode 131, ont été détectés sur tout le Sud de l'Angleterre et le Nord-Ouest de l'Europe.

II - 1/7 - PRODUITS DE FISSION PROVENANT DES EXPLOSIONS NUCLEAIRES

II - 1/7.1 - Les produits de fission.

Pour autant qu'on le sache, toutes les explosions nucléaires utilisent, au moins en leur stade initial, une réaction de fission en chaîne dans une ou plusieurs masses de matière fissile, qui peut être du thorium, de l'uranium, du plutonium ou d'autres transuraniens. Le dégagement d'énergie recherché est accompagné de la fission du noyau en deux nouveaux noyaux de masses presque toujours différentes, et de charge électrique peu éloignée d'une valeur bien déterminée, considérée comme la plus probable. Les produits de fission ainsi formés ont leur masse comprise entre 72 et 166 (on ne tient pas compte ici de la trifission, considérée comme peu probable). Les numéros atomiques sont compris entre 28 (nickel) et 65 (terbium). Les espèces chimiques les plus diverses sont donc représentées.

La probabilité de formation des différents noyaux ou "rendement de fission", varie beaucoup suivant le noyau fissionné et l'énergie des neutrons qui ont provoqué la fission. Un grand nombre d'études physiques et radiochimiques a été consacré à ce problème /G2/. Ce que nous devons retenir, c'est la difficulté de prévoir la composition du mélange des produits de fission, la nature et l'agencement des matériaux fissiles restant dans tous les cas secret militaire. Le tableau IV, ci-dessous donne une idée de l'ordre de grandeur de ces variations pour les principaux produits de fission.

Tableau IV

Rendement de fission de certains radionuclides, pour différentes fissions
/B7/G7/H1/H4/K1/K2/P6/W1/ - Extrait du deuxième rapport du Comité Scientifique de l'O. N. U./A2/

Produit de fission	Rendement de fission (en %) dans le cas de :						
	Th 232 (n. rapides)	U 235 (n. thermiques)	U 235 (n. rapides)	U 235 (n. 14 MeV)	U 238 (n. rapides)	U 238 (n. 14 MeV)	Pu 239 (n. rapides)
Kr 85		0,30	0,14	0,42	0,14	0,25	0,07
Sr 89	6,7	4,79	2,81	4,2	2,81	3,2	1,44
Sr 90	6,8	5,77	3,2	4,5	3,2	3,1	2,23
Y 91	7,2	5,4	3,68	4,64	3,68	3,78	2,69
Zr 95		6,2	5,7	4,69	5,7	5,40	5,12
Ru 103	0,16	3,0	6,6	3,5	6,6	4,89	6,25
Ru 106	0,042	0,38	2,7	1,58	2,7	3,11	6,17
Sb 125		0,011	0,024	0,48	0,024	0,65	0,123
I 131	1,2	3,1	3,33	4,02	3,33	5,29	4,85
Te 132	2,4	4,7	4,7	4,2	4,7	4,7	6,32
I 133		6,9	5,72	5,4	5,72		6,19
Cs 137	6,3	6,15	6,2	5,10	6,2	5,71	6,8
Ba 140	6,2	6,35	5,7	4,16	5,7	4,65	5,0
Ce 141	9,0	6,0	5,62	4,47	5,62	4,45	4,65
Ce 144	7,1	6,0	4,5	3,3	4,5	3,3	3,66

II - 1/7.2 - Activité β des produits de fission.

Presque tous les noyaux formés par fission sont instables et se désintègrent en émettant un rayonnement β^- , accompagné ou non de rayonnement γ . Trois d'entre eux peuvent émettre spontanément des neutrons (Br 87, Br 89 et I 137). Les chaînes de désintégrations ainsi formées, et dont le tableau III donnait un aperçu, dans quelques cas particuliers, aboutissent à des éléments stables, avec parfois juste avant un nuclide de période extrêmement longue (Te 130 : 10^{21} A) dont certains

Tableau V

ACTIVITES RELATIVES EN FONCTION DU TEMPS DES PRODUITS DE FISSION
DE PERIODE SUPERIEURE A 60 HEURES ET DE LEURS DESCENDANTS

(Uranium 238 - Neutrons rapides)

Nuclide	Période	1 sem.	2 sem.	4 sem.	8 sem.	12 sem.	6 mois	1 an	2 ans	3 ans	5 ans	10 ans
Kr-85	10,3 A	-	-	0,01	0,03	0,05	0,12	0,33	0,76	1,22	2,29	3,48
Sr-89	50,5 j	1,10	2,20	3,92	5,70	6,10	4,40	1,10	0,03	-	-	-
Sr-90	27,7 A	-	0,02	0,04	0,08	0,12	0,34	0,95	2,24	3,79	7,69	14,64
Y-90	64,2 h	-	0,02	0,04	0,08	0,12	0,34	0,95	2,24	3,79	7,69	14,64
Y-91	57 j	1,40	2,75	5,00	7,80	8,90	7,40	2,50	0,07	-	-	-
Zr-95	65 j	1,70	3,50	6,40	10,40	12,20	11,82	5,00	0,15	-	-	-
Nb-95 m	90 h	-	0,07	0,14	0,22	0,26	0,25	0,11	-	-	-	-
Nb-95	35 j	0,23	0,90	3,00	8,80	14,40	20,56	10,20	0,15	-	-	-
Mo-99	66 h	9,00	3,40	0,20	-	-	-	-	-	-	-	-
Tc-99 m	6,04 h	1,25	0,49	0,03	-	-	-	-	-	-	-	-
Ru-103	39,8 j	2,55	5,00	8,50	11,10	10,80	5,57	0,65	0,02	-	-	-
Rh-103 m	57 m	2,55	5,00	8,50	11,10	10,80	5,57	0,65	0,02	-	-	-
Ru-106	1 A	0,18	0,40	0,83	1,72	2,60	5,83	12,00	15,14	13,05	6,71	0,46
Rh-106	30 s	0,18	0,40	0,83	1,72	2,60	5,83	12,00	15,14	13,05	6,71	0,46
Ag-111	7,6 j	1,50	1,70	1,03	0,19	0,02	-	-	-	-	-	-
Cd-115 m	42,6 j	0,03	0,07	0,12	0,16	0,16	0,09	-	-	-	-	-
Cd-115	53 h	0,83	0,20	0,01	-	-	-	-	-	-	-	-
In-115 m	4,53 h	0,53	0,13	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Sn-123	136 j	0,15	0,30	0,60	1,14	1,60	2,67	2,95	1,22	0,40	-	-
Sn-125	9,4 j	1,43	1,83	1,38	0,38	0,08	-	-	-	-	-	-
Sb-125	2 A	0,01	0,04	0,12	0,30	0,47	1,18	2,90	4,95	6,00	6,43	2,20
Te-125 m	58 j	-	-	0,03	0,12	0,26	1,04	3,02	5,03	6,00	6,43	2,20
Sb-127	88 h	2,70	1,60	0,23	-	-	-	-	-	-	-	-
Te-127 m	105 j	0,05	0,13	0,28	0,51	0,69	0,98	0,85	0,02	-	-	-
Te-127	9,4 h	2,41	1,50	0,50	0,51	0,69	0,98	0,85	0,02	-	-	-
Te-129 m	33,5 j	0,40	0,76	1,25	1,50	1,32	0,50	0,04	-	-	-	-
Te-129	72 m	0,40	0,76	1,25	1,50	1,32	0,50	0,04	-	-	-	-
I-131	8,1 j	7,40	8,60	5,90	1,20	0,15	-	-	-	-	-	-
Xe-131 m	12 j	0,03	0,09	0,14	0,09	0,03	-	-	-	-	-	-
Te-132	77,7 h	8,00	3,90	0,50	-	-	-	-	-	-	-	-
I-132	2,26 h	8,20	4,20	0,58	-	-	-	-	-	-	-	-
Xe-133 m	2,3 j	0,22	0,06	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Xe-133	5,27 j	11,80	10,40	3,70	0,21	0,01	-	-	-	-	-	-
Cs-136	12,9 j	0,04	0,06	0,06	0,03	0,01	-	-	-	-	-	-
Cs-137	26,6 A	-	0,03	0,06	0,14	0,23	0,61	1,72	4,06	6,85	13,89	26,46
Ba-137 m	2,6 m	-	0,03	0,06	0,13	0,21	0,54	1,60	3,65	6,16	12,50	23,81
Ba-140	12,8 j	6,30	9,00	9,50	4,75	1,60	0,03	-	-	-	-	-
La-140	40,22 h	6,60	10,40	10,80	5,20	1,85	0,03	-	-	-	-	-
Ce-141	33,1 j	2,80	5,30	8,90	10,50	9,00	3,20	0,21	-	-	-	-
Pr-143	13,76 j	4,90	7,80	8,50	4,40	1,87	0,05	-	-	-	-	-
Ce-144	285 j	0,29	0,62	1,29	2,60	3,90	8,40	15,90	16,12	11,52	4,35	0,08
Pr-144	17,27 m	0,29	0,62	1,29	2,60	3,90	8,40	15,90	16,12	11,52	4,35	0,08
Nd-147	11,1 j	3,22	4,50	4,10	1,57	0,42	0,01	-	-	-	-	-
Pm-147	2,64 A	0,02	0,07	0,23	0,56	0,90	2,40	5,85	11,15	14,54	18,47	10,18
Sm-151	93 A	-	-	-	-	-	0,03	0,10	0,24	0,41	0,88	1,82
Eu-155	1,7 A	-	0,02	0,05	0,10	0,15	0,37	0,88	1,45	1,68	1,60	0,51
Eu-156	15,4 j	0,20	0,31	0,36	0,22	0,10	0,01	-	-	-	-	-
Tb-160	72,3 j	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Tb-161	6,88 j	0,02	0,02	-	-	-	-	-	-	-	-	-

* D'après P.J. DOLAN, DASA 525, May (1959).

** Calculé par M. L. DRUGY et G. LAMBERT.

Nota : On n'a pas tenu compte des activités inférieures à 0,01 %.

sont radioactifs α : le Ce 142 (5.10^{15} A), le Nd 144 (5.10^{15} A) et le Sm 157 ($1,3.10^{11}$ A). Les périodes radioactives sont, en pratique, comprises entre cette valeur maximale et 1 seconde.

L'activité relative des différents produits de fission varie beaucoup en fonction du temps. Les éléments de courte période l'emportent au début, mais leur disparition d'autant plus rapide donne progressivement la prépondérance aux radioéléments à plus longue période. Hunter et Ballou /H6/ ont publié en 1951 les courbes d'activité relative des produits de fission, calculées pour l'uranium 235 fissionné par neutrons lents. Ce travail a été repris en 1956 par Bolles et Ballou /B11/, puis en 1959, dans le cas de l'uranium 238 fissionné par des neutrons de 14 MeV, par P.J. Dolan /D5/. Le tableau V, dérivé de cette dernière publication, a été complété par nous, par les quatre dernières colonnes, relatives à des âges de 2, 3, 5 et 10 ans. Seuls figurent sur ce tableau les nuclides dont la période est supérieure à 60 heures, ou qui descendent d'un tel nuclide. Les activités relatives inférieures à 0,01 % n'ont pas été mentionnées. L'activité de l'ensemble des produits de fission décroît, bien entendu en fonction du temps suivant une loi complexe, qui n'a aucune raison d'être ni exponentielle, ni même uniforme. La figure 5 montre l'allure de cette décroissance, indiquée par Dolan /D5/. Way et Wigner on fait remarquer, en 1948 /W2/, que la radioactivité β d'un mélange de produits de fission décroissait suivant la loi empirique.

$$A_t = A_1 t^{-n}$$

où A_t est l'activité du mélange à l'instant t après l'explosion

A_1 est l'activité du mélange à l'instant $t = 1$

n est une constante, pour un certain intervalle de temps, généralement voisine de 1,2. Entre 1 heure et 200 jours après l'explosion, une valeur de $n = 1,15$ décrit à 15 % après la décroissance de l'activité β totale.

Dans ce dernier cas, on peut définir une pseudo-période T' , ou temps nécessaire pour atteindre l'activité moitié, qui n'est pas constante mais au contraire de la forme :

$$T' = 0,78 t \quad (t \text{ étant l'âge des produits})$$

Cette importante décroissance en fonction du temps fait que la contribution à l'activité β globale des nuclides radioactifs artificiels les plus récents est presque toujours prépondérante dans les premières années qui suivent la fin de la dernière série d'explosions. Ce fait est important : il interdit pratiquement d'assimiler l'activité des aérosols à leur concentration atmosphérique, sauf dans le cas de produits de même âge, ou, lorsque les âges sont connus, en effectuant une bonne correction de décroissance.

II - 1/7.3 - Activité γ .

Un certain nombre des produits de fission formés ou de leurs descendants, présentent, outre leur activité β^- , une activité γ . Comme la désexcitation des noyaux, génératrice de rayonnement γ s'effectue très souvent en plusieurs temps, le nombre de photons émis peut être plus élevé que le nombre de désintégrations proprement dites, bien que de nombreux nuclides ne participent pas à cette activité. La composition du mélange de produits de fission variant considérablement avec le temps, le rapport des activités γ/β peut varier également : il serait voisin de 1 pour des produits âgés de moins de 1 mois, mais peut atteindre des valeurs comprises entre 3 et 7, pour des produits âgés de 3 ans /B7/. En fait, la valeur globale du rayonnement γ , fondamentale pour l'estimation des doses reçues par les organismes vivants peu éloignés de l'aire d'explosion, et pour la détection à distance des nuages radioactifs, est de peu de valeur, comparativement aux immenses possibilités offertes par la spectrométrie γ . Il est en effet possible d'identifier un grand nombre de produits de fission par l'énergie du rayonnement γ qu'ils émettent, à condition qu'ils ne soient pas dissimulés par d'autres produits de plus haute activités émettant un rayonnement d'énergie voisine. Dans ce cas, on peut néanmoins effectuer des analyses précises, qualitativement et quantitativement, de façon à mettre en évidence des périodes de décroissance caractéristiques, comme on le ferait en comptage global. Le changement d'allure du spectre et la décroissance inégale des différents pics sont caractéristiques de l'âge des produits de fission. Un certain nombre de pics peuvent être confondus, au début, avec les pics γ du dépôt actif du radon et du thoron, mais là aussi, l'étude de la décroissance du spectre, permet de différencier aisément les émetteurs. La figure 6 qui montre la décroissance des retombées radioactives recueillies à Aoulef en Février 1960, illustre bien ces décroissances sélectives. La figure 7* montre que le spectre γ des aérosols radioactifs naturels, immédiatement après leur prélèvement (spectre du haut) et leur disparition complète après six jours de décroissance (spectre du bas). Ce spectre a été obtenu sur un filtre traversé par

* Les spectres des figures 7 à 17 ont été obtenus avec la collaboration de R. Chesselet et D. Nordemann.

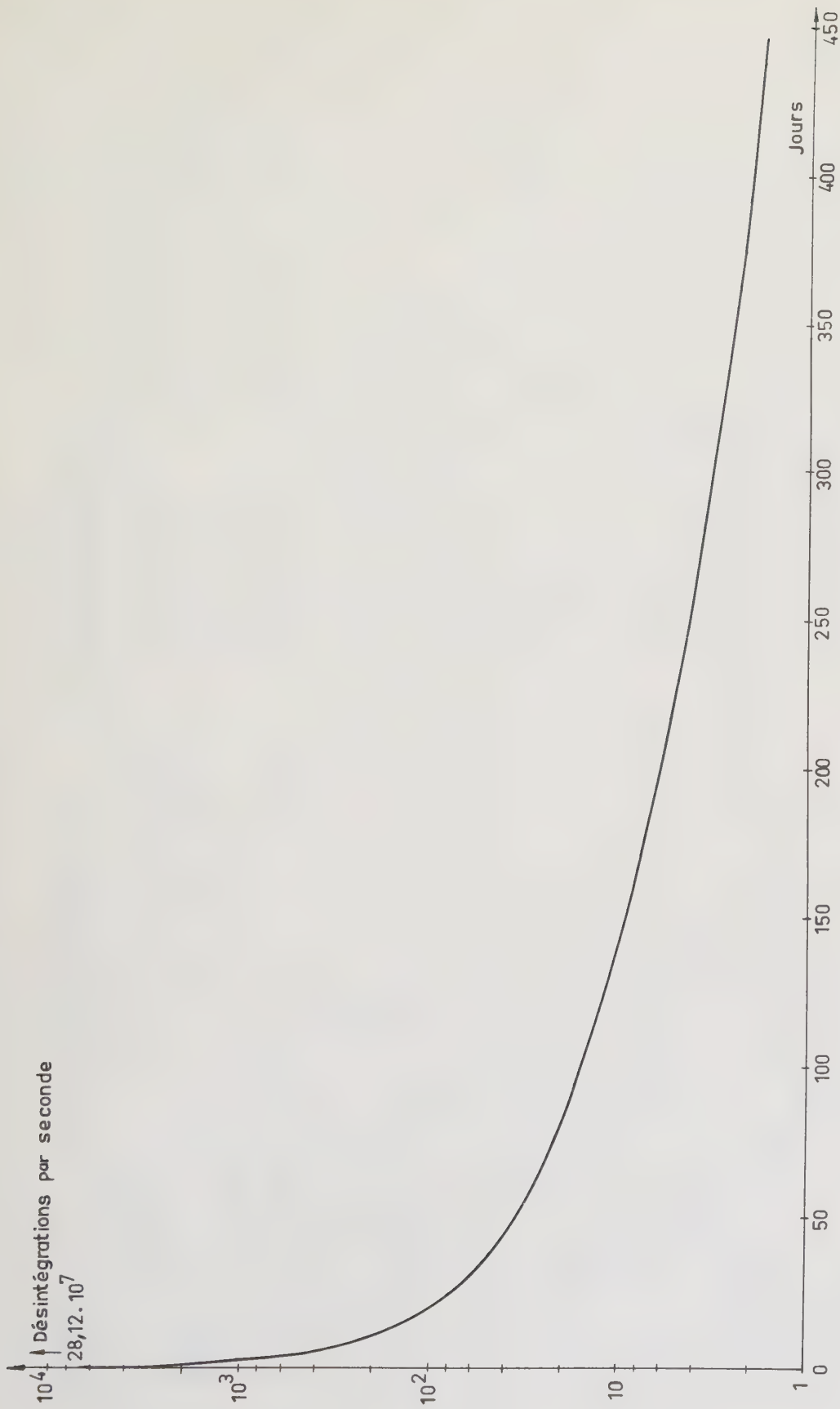


Fig. 5/II.1 - Décroissance de l'activité en fonction du temps pour le mélange de produits de fission correspondant à la fission de 10^9 atomes d' ^{238}U par des neutrons rapides (14 Mev.) (D'après P. J. Dolan / D5/).

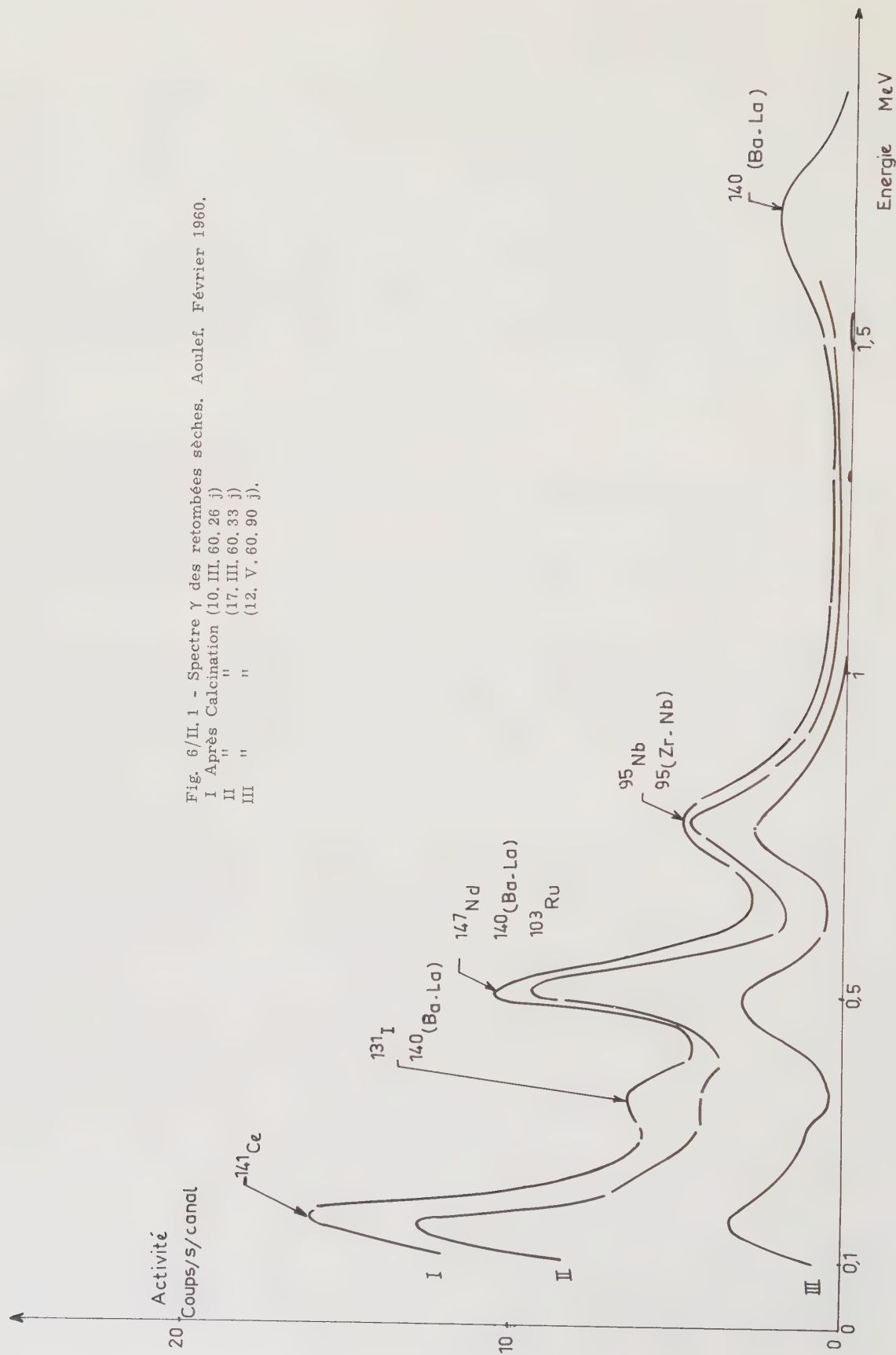


Fig. 6/II, 1 - Spectre γ des retombées sèches, Aoulef, Février 1960.
 I Après Calcination (10. III, 60, 26 j)
 II " " (17. III, 60, 33 j)
 III " " (12. V, 60, 90 j).

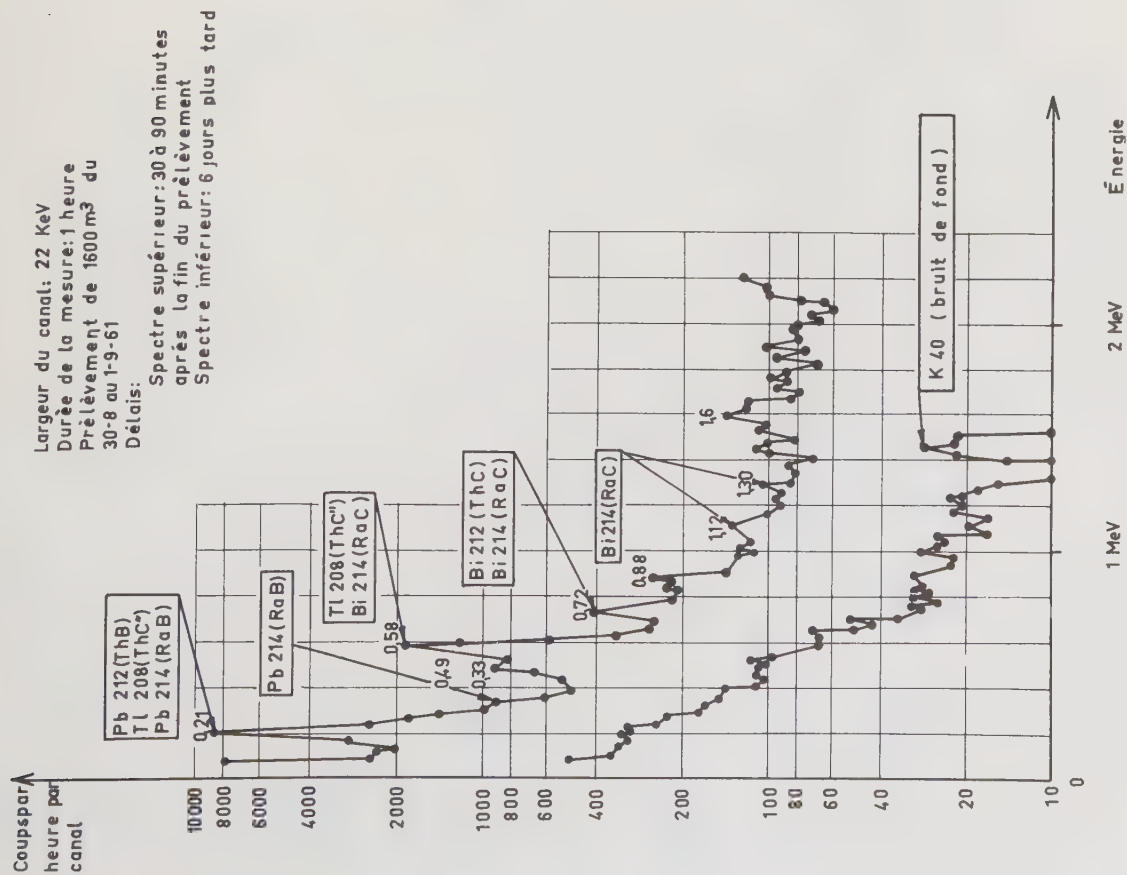


Fig. 7/II.1 - Spectre γ : produits naturels.

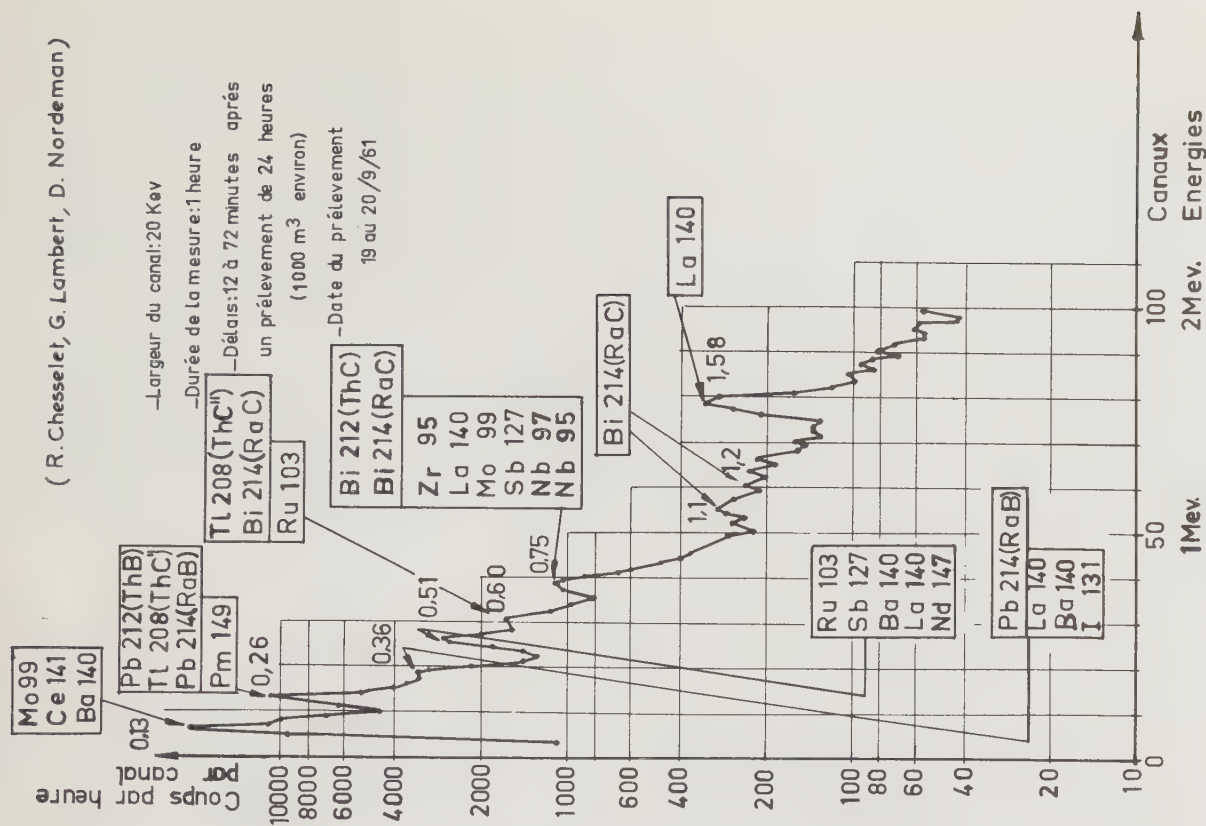


Fig. 8/II.1 - Spectre γ : produits naturels et artificiels.

1 600 m³ d'air environ, du 30 Août au 1er Septembre 1961. La figure 8 montre la modification fondamentale subie par le spectre γ moins de trois semaines plus tard, alors que des produits de fission ont été injectés dans l'atmosphère par les récentes explosions nucléaires soviétiques du début Septembre 1961. Trois nouveaux pics ont fait leur apparition à 0,13 MeV, 0,50 MeV et 1,6 MeV, qui sont caractéristiques des produits de fission jeunes. Les figures 9, 10 et 11 qui suivent montrent la disparition rapide des pics dûs aux aérosols radioactifs naturels, ce qui permet de mieux distinguer le spectre des produits de fission, seuls présents après 5 jours de décroissance. Les figures 12, 13, et 14 montrent les transformations progressives du spectre γ au cours des huit mois suivants. Sur le dernier de ces spectres, on voit apparaître par suite de la diminution de l'activité globale du prélèvement, le potassium 40, qui provient de la radioactivité naturelle du détecteur utilisé, et qui se retrouve intégralement dans le bruit de fond de l'installation, indiqué figure 15. Il devient désormais nécessaire de soustraire le bruit de fond, au détriment de la valeur statistique de la mesure. La figure 16 montre le spectre net ainsi obtenu, toujours sur le même prélèvement du 19 au 20 Septembre 1961. Enfin, la figure 17 nous montre l'allure du spectre de produits beaucoup plus anciens et correspondant à la filtration d'un volume considérable d'air (31 000 m³) de Octobre 1960 à Avril 1961. Le zirconium-niobium 95 a complètement disparu, pour laisser apercevoir le césium 137. Malgré le grand volume d'air filtré, il a été nécessaire d'effectuer la mesure pendant 15 heures (compte non tenu du bruit de fond) pour avoir un spectre statistiquement valable.

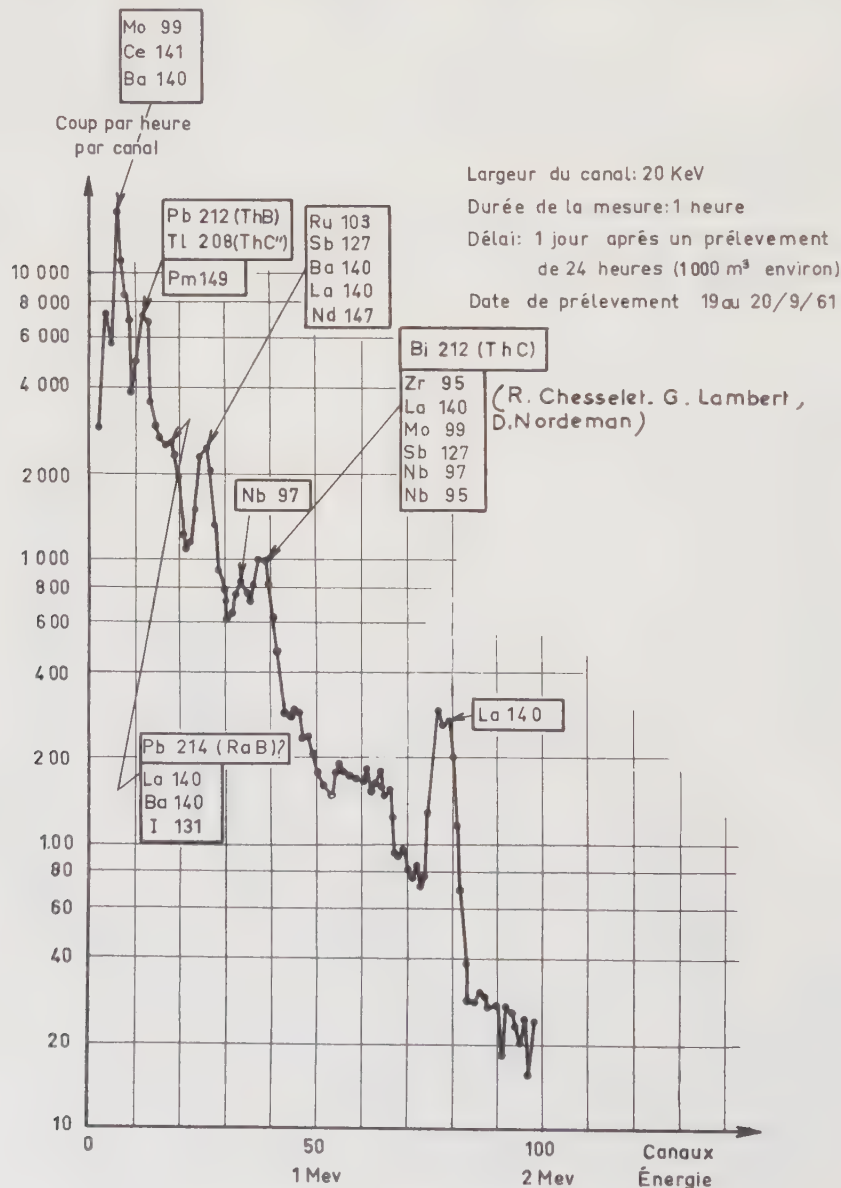


Fig. 9/II, 1 - Spectre γ : produits naturels et artificiels.

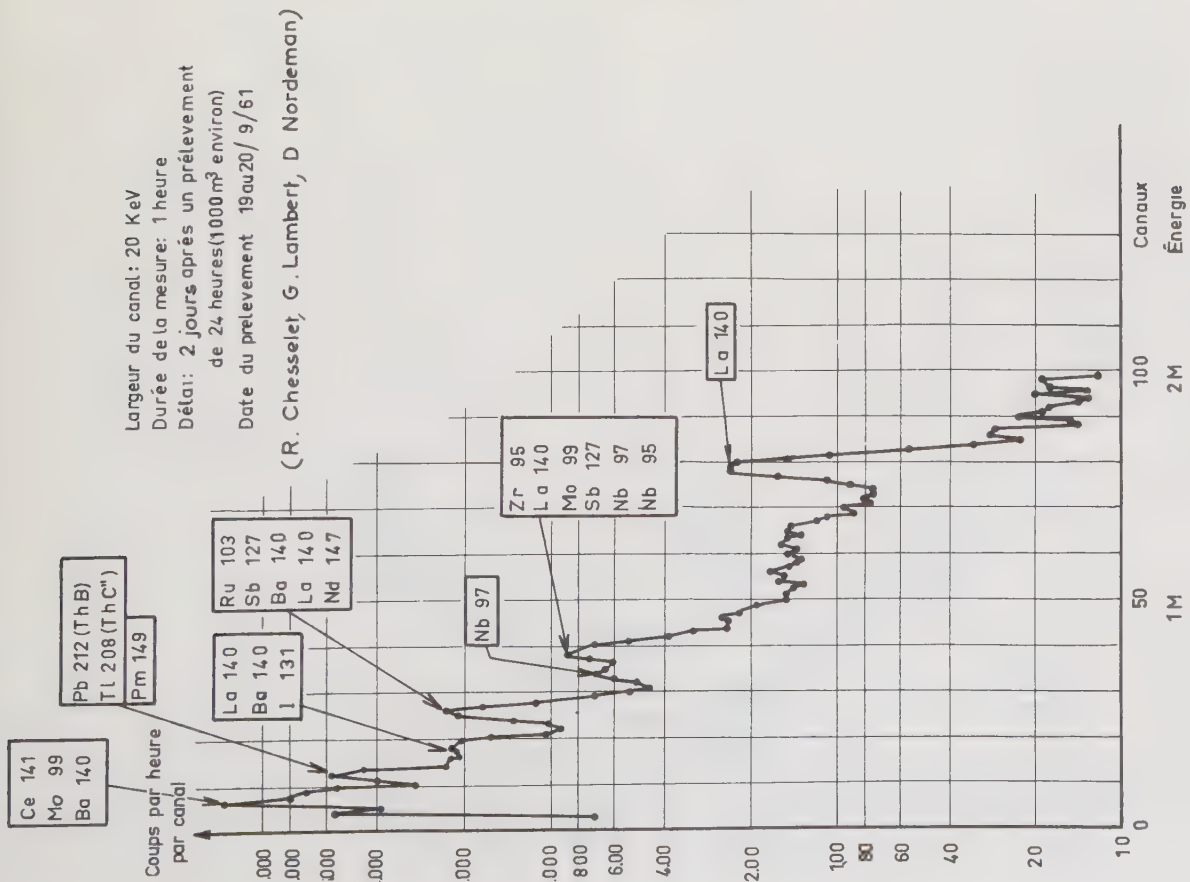


Fig. 10/II.1 - Spectre γ : produits naturels et artificiels.

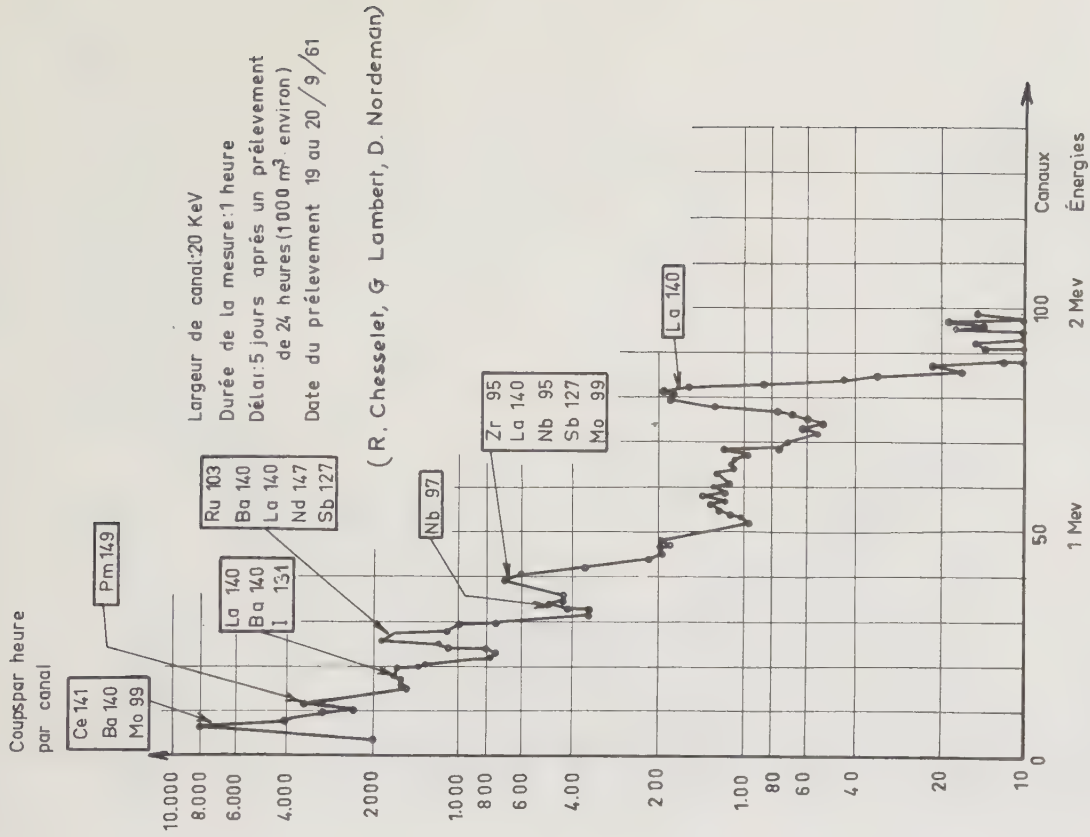


Fig. 11/II.1 - Spectre γ : produits artificiels.

Largeur du canal : 20 KeV
 Durée de la mesure : 1 heure
 Délai : 1 mois après un prélèvement
 de 24 heures (1000 m³ environ)
 Date du prélèvement 19 au 20/9/61

(R. Chesselet, G. Lambert, D. Nordeman)

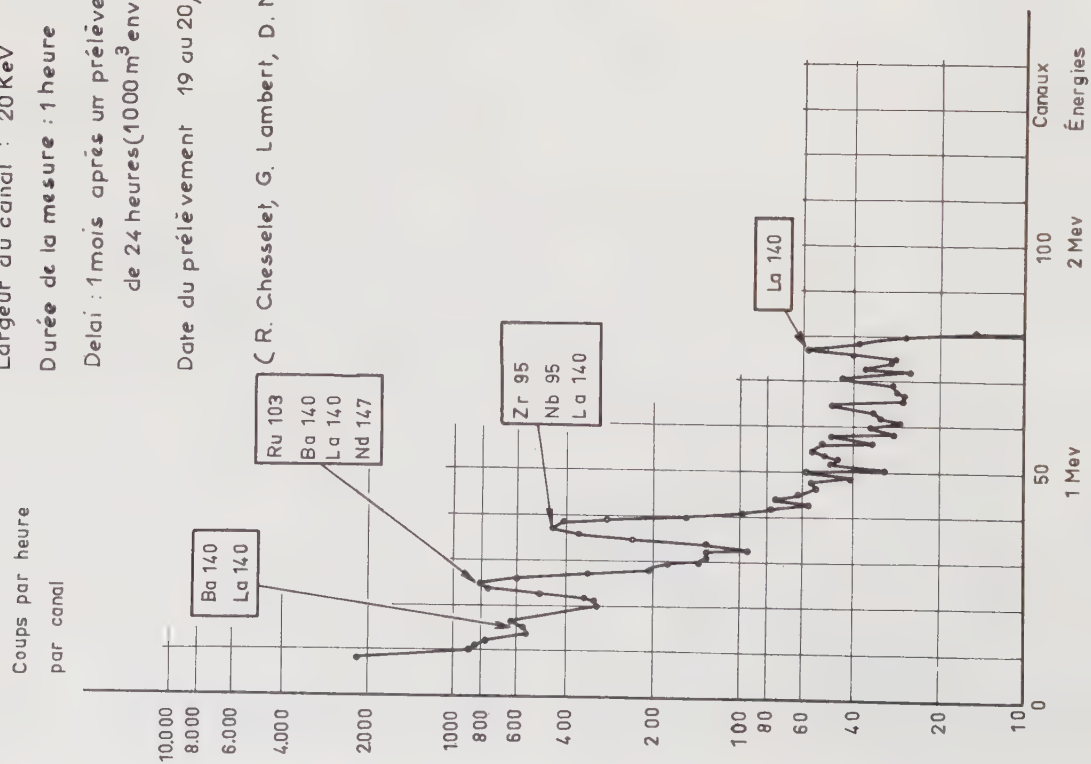


Fig. 12/II.1 - Spectre γ : produits artificiels.

Largeur de canal : 20 KeV
 Durée de la mesure : 1 heure
 Délai : 2 mois après un prélèvement
 de 24 heures (1000 m³ environ)
 Date du prélèvement 19 au 20/9/61

(R. Chesselet, G. Lambert, D. Nordeman)

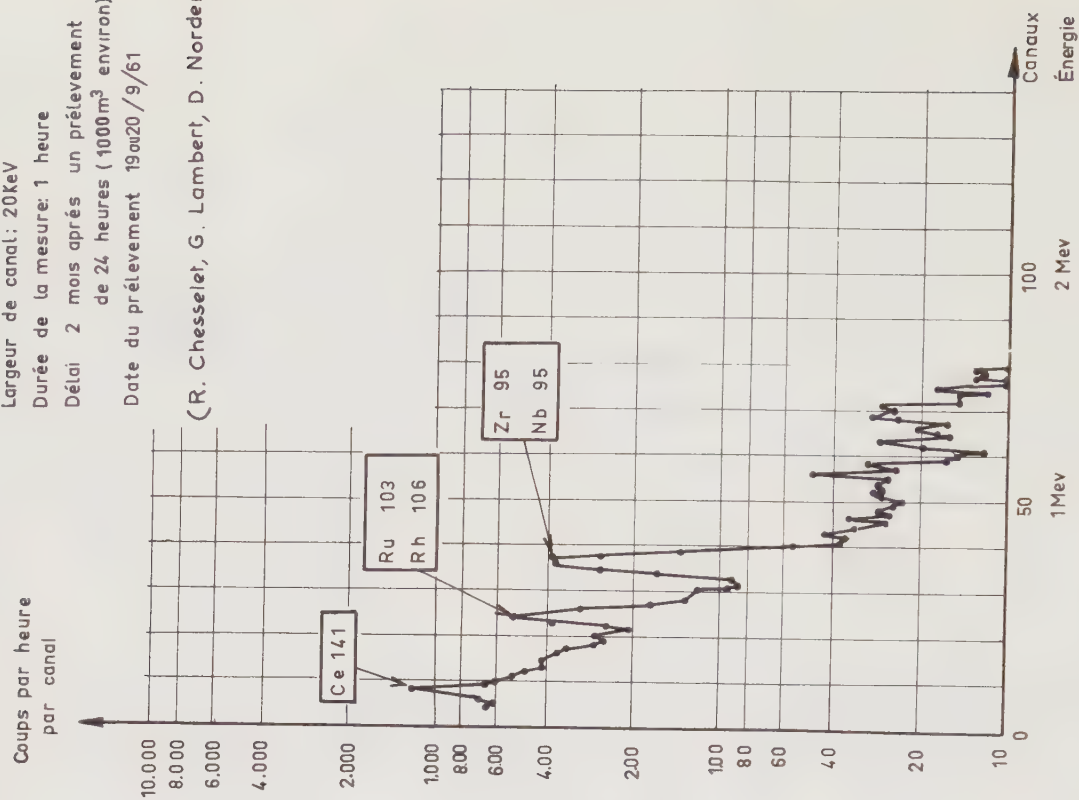


Fig. 13/II.1 - Spectre γ : produits artificiels.

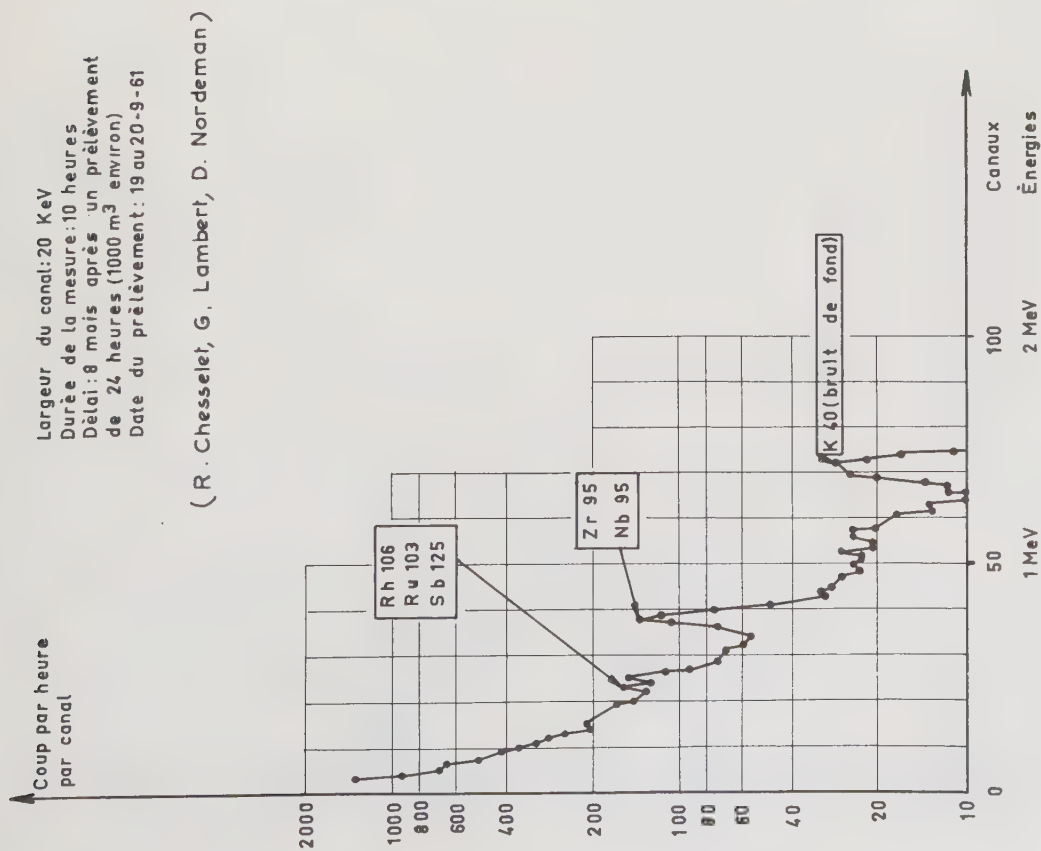


Fig. 14/II.1 - Spectre γ : produits artificiels.

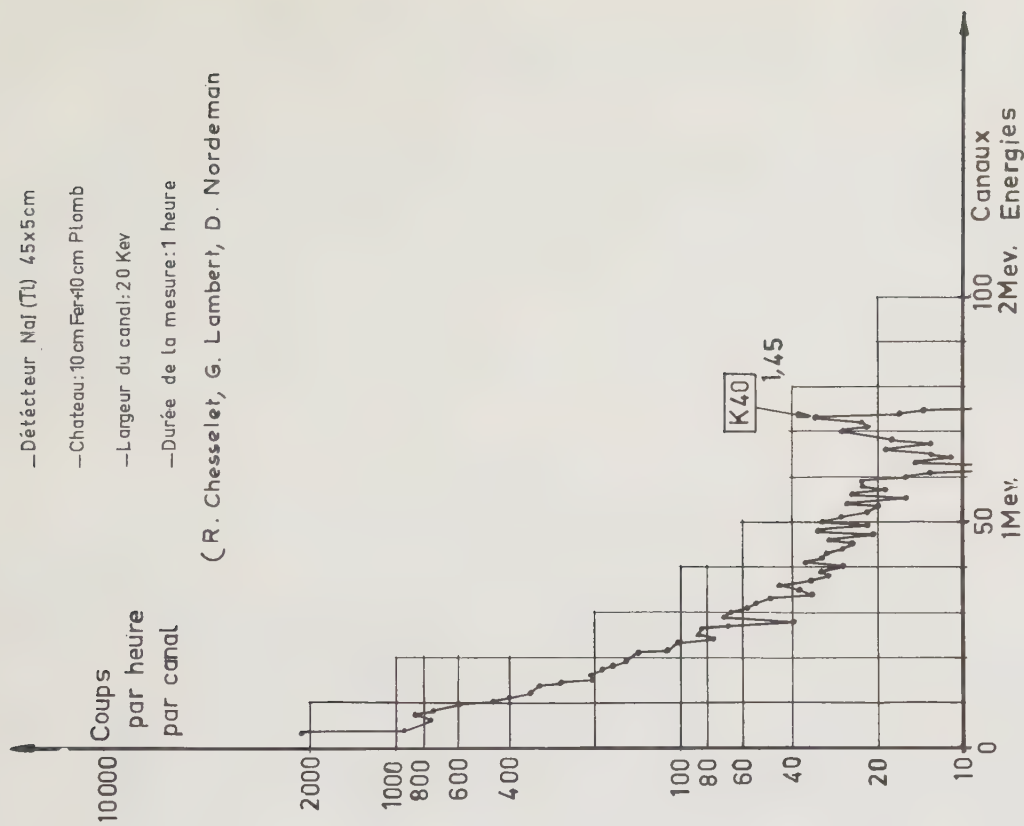


Fig. 15/II.1 - Spectre γ : Mouvement propre.

Largeur du canal: 40 KeV
Durée de la mesure: 10 heures
Délai: 8 mois après un prélèvement de
1000 m³ effectué du 19 au 20 - 9 - 61

(Voir fig: 9)

(R. Chesselet, G. Lambert, D. Nordeman)

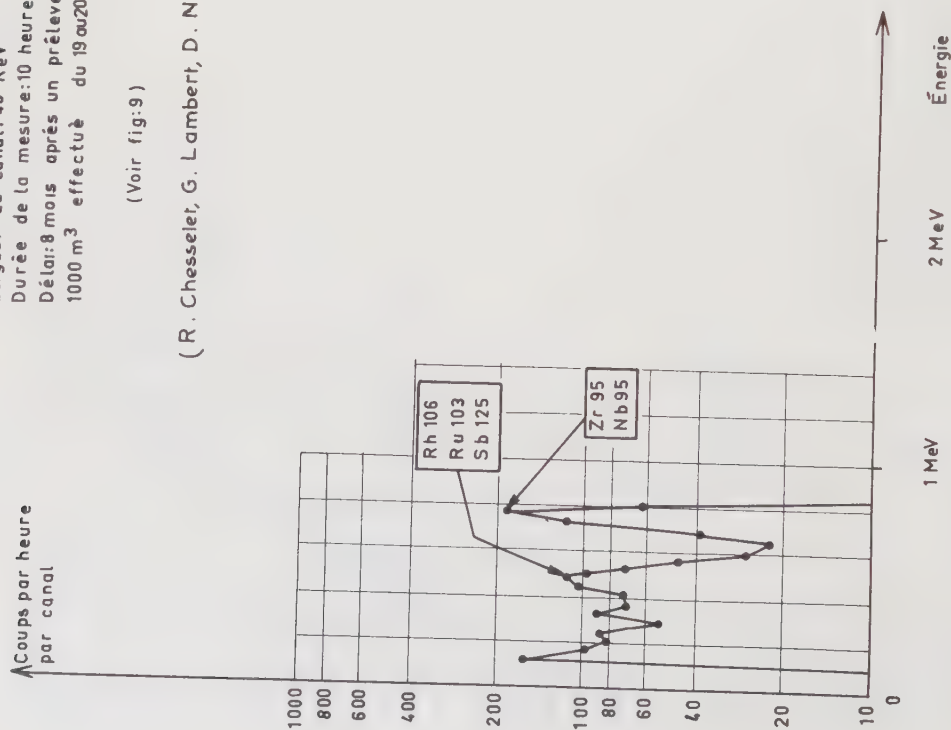


Fig. 16/II.1 - Spectre γ : produits artificiels (bruit de fond déduit).

Largeur de canal: 40 KeV
Durée de la mesure: 15 Heures
Age des produits: 3 ans
Prélèvement de 31000 m³ effectué
à bord du Norsel du 22-10-60 au
7-4-61

(R. Chesselet, G. Lambert, D. Nordeman)

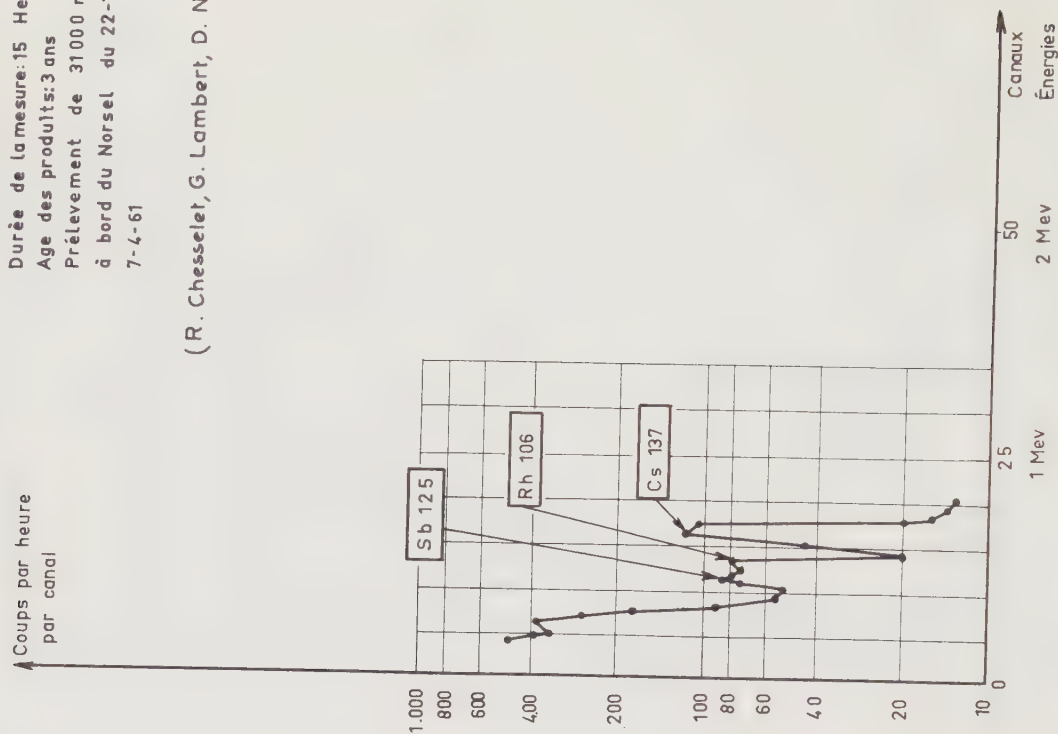


Fig. 17/II.1 - Spectre γ : produits artificiels (bruit de fond déduit).

Cette méthode d'analyse spectrographique permet d'effectuer sans difficultés particulières le datage d'un mélange de produits de fission plus finement que la simple décroissance β globale, qui se trouve faussée à la base par la présence simultanée de produits d'âges différents, qu'on ne peut distinguer et qui paraissent avoir un âge moyen dépourvu de signification.

II - 1/7.4 - Formation et introduction des produits de fission dans l'atmosphère.

Lors de l'explosion d'un engin nucléaire, il se forme une zone à température très élevée, ou "boule de feu", à l'intérieur de laquelle toute matière se trouve volatilisée, qu'il s'agisse de l'engin explosif, des matières non fissionnées des produits de fission, du support de l'engin (tour métallique par exemple) ou de matières terreuses ou rocheuses si la boule de feu vient à toucher le sol, ou enfin d'eau de mer s'il s'agit d'une explosion marine ou sous-marine. En même temps, l'échauffement de l'air crée une violente ascendance qui entraîne gaz et vapeurs à de hautes altitudes. Les vapeurs de condensent ensuite pour former un nuage de petites particules solides, nuage dont les dimensions et l'altitude dépendent de la puissance et de l'altitude de l'explosion. Le tableau VI ci-dessous résume quelques données à ce sujet.

Tableau VI

Dimensions du nuage radioactif 10 minutes après une explosion de surface
(d'après W. W. KELLOG /K3/)

Puissance de l'explosion en équivalent T N T	Altitude du nuage		Dimensions du nuage		
	Base (m)	Sommet (m)	Diamètre (m)	Hauteur (m)	Masse d'air en MT
1 KT	2 800	3 600	2 000	930	2,2
10 KT	7 700	9 500	5 700	1 830	16,5
100 KT	12 000	15 700	13 700	3 700	126
1 MT	15 700	23 000	37 000	7 300	820
10 MT	18 300	34 000	100 000	15 000	5 200
100 MT	23 300	57 000	260 000	33 000	10 000

En particulier la condensation des oxydes de fer conduit à la formation de petites sphères de magnétite (Fe_3O_4). La granulométrie semble généralement comprise entre $10\ \mu$ et $0,01\ \mu$, avec un maximum de probabilité aux alentours de $0,2\ \mu$ / S 10/. Les calculs de Junge /J7/ montrent du reste que la plupart des particules subsistant dans l'atmosphère doivent être comprises entre $1,0$ et $0,01\ \mu$: les particules plus grosses décantent rapidement, alors que les plus petites sont fixées par des aérosols plus gros.

La diversité des masses atomiques et des propriétés chimiques des divers produits de fission peut conduire à une certaine séparation de ces produits. En particulier les produits de fission formés par désintégrations de produits gazeux (voir tableau III) subissent une diffusion plus importante dans l'atmosphère. Ceci a pour conséquence la formation dans un premier stade d'aérosols plus fins, donc ayant une vitesse de décantation inférieure.

Ensuite, ces aérosols se fixent sur les aérosols plus gros, présents dans la haute atmosphère, mais si la vitesse de décantation devient plus importante, la radioactivité de chaque poussière reste un peu inférieure, ce qui conduit de toute façon à un fractionnement.

Ainsi, on voit sur le tableau III que le césium 137 qui dérive d'un xenon 137 de période 3,9 minutes, doit être plus dispersé que le strontium 90, issu d'un krypton 90, de période 33 secondes, et à fortiori que le zirconium 95 qui descend partiellement d'un krypton 95 de période 1 seconde, mais surtout de produits solides : rubidium, et strontium 95 de courtes périodes. Ceci peut expliquer que les retombées radioactives comportent, dans la première période, un excès apparent en produits tels que le cérium 141 et le zirconium 95, qui seraient les principaux constituants des particules les plus grosses et les plus actives.

A la fin Juillet 1962, nous avons ainsi comparé les estimations des quantités de zircocium 95 (et de son descendant le niobium 95) accumulées dans la Méditerranée Occidentale, calculées d'une part à partir de mesures globales, et des coefficients théoriques maximaux, et d'autre part, à par-

tir de mesures spectrographiques γ , dans les retombées, et directement dans l'eau de mer : même en majorant considérablement les coefficients appliqués à la première méthode, on ne peut rendre compte (à un facteur 3 près) des résultats trouvés par mesure directe du zirconium et du niobium 95/L8/, /C4/.

Une autre conséquence du mode de formation des aérosols radioactifs artificiels, est l'hétérogénéité dans la répartition de la radioactivité entre les différentes particules : une particule constituée par les condensations de vapeurs de produits de fission, ou d'activation aura une activité grossièrement proportionnelle à son poids, ou à son volume. Au contraire, une particule des aérosols stratosphériques présents en permanence, qui a capté des aérosols radioactifs très fins, peut avoir une activité non liée à sa granulométrie. Une des conséquences de cette observation est que certaines particules pourront être extrêmement radioactives : Gross et ses collaborateurs ont observé une particule de 4μ , dont l'activité était de 5.10^{-9} curies, 40 jours après sa formation /G6/.

Nous avons nous-même recueilli à Orsay* dans un "Crapal" (voir quatrième partie), le 6 Septembre 1961, c'est-à-dire six jours après la reprise des essais nucléaires, une poussière de quelques microns dont l'activité β était encore de 10^{-9} curies trois semaines après sa formation, c'est-à-dire sur laquelle il fut possible d'effectuer une étude spectrographique γ , montrant qu'il s'agissait bien d'un mélange de produits de fission jeunes /L8/.

Si de telles activités concentrées sont exceptionnelles, il faut toutefois remarquer que d'une façon générale, lorsqu'on effectue l'autoradiographie, ou le comptage région par région d'un filtre ayant filtré un volume d'air contenant des aérosols radioactifs artificiels, on constate en général que la plus grande partie de l'activité est concentrée en quelques points par cm^2 de filtre.

II - 1/8 - PRODUITS D'ACTIVATION

Nous avons vu que, au moment de la formation des aérosols radioactifs artificiels, les produits de fission étaient intimement mélangés à des résidus divers, provenant de la surface du sol ou des constituants et du support de la bombe. Ces diverses substances sont fortement irradiées au moment de l'explosion par un flux de neutrons très intense et les nuclides qui les constituent et qui possèdent des sections efficaces de capture suffisantes, peuvent donner naissance à des radioéléments artificiels différents des produits de fission.

C'est ainsi que l'on a pu déceler la présence dans l'atmosphère des principaux produits d'activation mentionnés dans le tableau VII ci-dessous :

Tableau VII
Principaux produits d'activation

Nuclides	Périodes /S13/
Tritium	12,26 ans
Carbone 14	5 568 ans
Sodium 24	15 heures
Aluminium 28	2,3 minutes
Silicium 31	2,5 heures
Chlore 36	3.10^5 ans
Manganèse 54	291 jours
Fer 55	2,6 ans
Fer 59	45 jours
Cobalt 57	270 jours
Cobalt 58	71 jours
Cobalt 60	5,2 ans
Zinc 65	245 jours

* avec la collaboration de P. Bonnet-Maury.

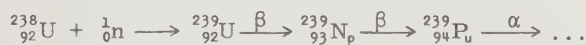
A cette liste, il convient d'ajouter certains radioéléments volontairement formés au moment de l'explosion, pour servir de traceurs radioactifs :

le rhodium 102	de période	210 jours
le tungstène 185	de période	76 jours
le cadmium 109	de période	470 jours

Toutefois, les concentrations de ces nuclides sont généralement restées très faibles, et seules des séparations radiochimiques soignées ont permis de les mesurer.

II - 1/9 - MATIERES FISSILES

Le rendement de l'explosion n'est certainement pas très élevé, en général, par suite des hautes températures, rapidement atteintes, qui volatilisent une partie importante de la matière fissile avant qu'elle ait pu être fissionnée. Des quantités importantes de matières fissiles ont dû ainsi être introduites dans l'atmosphère. Sous l'influence du flux de neutrons présent pendant l'explosion, on peut avoir des réactions d'activation, analogues à celles que nous signalions dans le paragraphe II - 1/8 parmi lesquelles une des plus importantes est probablement la formation d'uranium 239 et de plutonium 239



$$T = 24 \text{ m} \quad T = 2,3 \text{ j} \quad T = 24000 \text{ ans}$$

L'activité du neptunium 239 ainsi formé peut être du même ordre que l'activité β totale due aux produits de fission, dans les produits âgés de quelques jours /H5/, /K4/, /S11/. D'autres trans-uraniens ont été également décelés /C1/, /G1/ ainsi que de l'uranium 237, produit par réaction (n, 2n) sur l'uranium 238. Le plutonium 239, principal nuclide à longue période créé par ces réactions, n'atteint semble-t-il, en raison de sa période même, que des activités faibles, de l'ordre de 2 % de celle du strontium 90 /S9/.

II - 1/10 - EN RESUME

Si l'on prélève au voisinage du sol les aérosols contenus dans un certain volume d'air, compte tenu des concentrations que nous avons indiquées, et du fait que les aérosols radioactifs artificiels n'ont presque jamais dépassé celle de 5 pCi/m³, nous devons nous attendre à voir la radioactivité du prélèvement évoluer de la façon suivante :

1° - Au début : forte activité α , β et γ , décroissant avec une période de l'ordre de 30 minutes, due au dépôt actif du radon.

2° - Après 3 heures : activité moyenne α , β et γ décroissant avec une période de l'ordre de 10 heures, due au dépôt actif du thoron.

3° - Après 2 à 5 jours de décroissance : faible activité β et γ décroissant en $t^{-1,2}$, due aux produits de fission à moyenne et longue période.

4° - Après une dizaine d'années de décroissance : extrêmement faible activité α , β , γ due aux produits de fission à longue période, et aux résidus de matières fissiles.

CHAPITRE II. 2

MESURE DE LA RADIOACTIVITE β DES AEROSOLS, DANS LA BASSE ATMOSPHERE

II - 2/1 - Nous avons vu, au chapitre II.1, quels étaient les aérosols radioactifs que l'on risquait de rencontrer dans l'atmosphère. Le plus grand nombre d'entre eux, en particulier les aérosols radioactifs artificiels, sont émetteur de rayonnement β^- . La mesure de ce rayonnement est de beaucoup la plus simple à mettre en oeuvre, car les traitements physicochimiques des échantillons sont réduits, voire inexistant, et parce que le matériel nécessaire au comptage est généralement simple, robuste et facile à manipuler même par du personnel peu spécialisé. La pénétration des rayons β dans l'air n'est toutefois pas suffisante pour qu'on puisse mesurer directement "in situ", la radioactivité des aérosols contenus dans un volume d'air suffisant. D'autre part, cette méthode ne permettrait pas de faire la distinction entre les différentes espèces d'aérosols radioactifs présents. Enfin, l'importance du bruit de fond cosmique et du rayonnement γ , émis par le sol ou l'atmosphère réduiraient singulièrement la précision de cette méthode. Toutes les mesures que nous décrirons par la suite, débutent donc par l'extraction des aérosols de l'atmosphère, et leur concentration sous un petit volume permettant d'effectuer aisément les mesures ultérieures.

II - 2/2 - METHODES DE COLLECTION DES AEROSOLS DE L'ATMOSPHERE

Toutes les méthodes utilisées consistent à aspirer de l'air, au moyen d'une pompe, à travers un dispositif qui laisse passer les gaz et retient les particules solides en suspension. On peut d'une façon générale utiliser, pour cette filtration, les dispositifs suivants :

- 1/ Collection des particules ionisées par des électrodes convenablement polarisées,
- 2/ Ionisation de toutes les particules par des champs électriques intenses, puis collection
- 3/ Collection des particules les plus petites par diffusion entre des plateaux parallèles à la direction du courant d'air, dont la distance sera fixée en fonction du libre parcours moyen, et de la vitesse d'entraînement,
- 4/ Rétention des particules solides à la surface d'un filtre à structure fibreuse ou poreuse,
- 5/ Entraînement par les précipitations humides (pour mémoire).

Les trois premiers dispositifs permettent une collection sélective des aérosols. Le quatrième, qui est de loin le plus facile à mettre en oeuvre, et qui, en général, permet la filtration de volumes d'air plus importants, sera au contraire d'autant plus parfait qu'il retiendra de manière identique les particules les plus différentes. C'est ce dispositif que nous avons adopté dans presque tous les cas. Les différents facteurs à considérer dans cette filtration sont les suivants :

- 1/ Débit et volume d'air filtré
- 2/ Caractéristiques du filtre
- 3/ Réalisation de l'appareillage : paramètres et performances des installations.

II - 2/2.1 - Volume d'air filtré.

Diverses considérations interviennent dans le choix du volume d'air analysé. Les premières études, ayant des objectifs hygiénistes, avaient adopté un volume d'air voisin de celui qui est respiré en un jour par un homme, c'est-à-dire environ 50 m³. Ce volume peut, dans beaucoup de cas être considéré comme représentatif de l'atmosphère et de fait, des appareils identiques placés côte à côte et filtrant en quelques heures des volumes d'air de cet ordre de grandeur donneront en général à 5 % près les mêmes valeurs de concentration en aérosols radioactifs artificiels (cf. § II - 4/2.3).

Pour diverses raisons, il est apparu souhaitable d'augmenter ces volumes et de nombreuses installations pompent environ 200 m³ par prélèvement : la représentativité du prélèvement est augmentée, ainsi que sa radioactivité totale, ce qui en principe facilite les mesures. Toutefois, l'empoussiérage de l'atmosphère est tel que ces prélèvements provoquent déjà un colmatage non négligeable des filtres, et par conséquent exigent l'emploi de pompes non seulement à grand débit (supérieur à 10 m³/heure), mais aussi à forte dépression, d'où une grosse consommation électrique (environ 0,1 à 0,5 kW).

Dans les périodes proches des explosions nucléaires où existe une certaine probabilité de trouver une "poussière chaude", telle que nous en avons signalées (§ II - 1/7.4), si l'on cherche à avoir une représentation exacte de la radioactivité atmosphérique, il faut que le volume d'air pompé soit suffisant pour que la présence d'une telle poussière ne perturbe pas la valeur statistique du prélèvement. Si ces poussières ont une abondance voisine de 1 par 10³ m³, chiffre qui a été signalé, le volume pompé devra être supérieur à 3 ou 4 000 m³. Les puissances électriques mises en jeu sont alors importantes (>1 à 2 kW). Ce résultat a un aspect paradoxal, du fait que la radioactivité des aérosols est beaucoup plus importante en général aux périodes où l'on risque de trouver ces "poussières chaudes", et qu'un prélèvement réduit permet d'excellentes mesures radioactives, par ailleurs.

Ces préoccupations intéressent surtout l'hygiéniste plus que le physicien, ce dernier cherchant à mesurer des concentrations d'aérosols, plutôt que des radioactivités atmosphériques. Les poussières chaudes ne jouent alors que le rôle de sources d'erreur qu'il convient de ne pas négliger.

II - 2/2.2 - Mesure du débit ou volume d'air filtré.

La mesure du débit est, dans la plupart des cas effectuée avec une précision de 10 à 15 % au moyen d'un compteur à gaz. Ce dernier instrument apporte une perte de charge supplémentaire au circuit pneumatique ce qui diminue le débit des pompes. D'autres dispositifs tels que la mesure du courant d'air par tube de Pitot ou au moyen d'une petite hélice, perturbent peu le débit, mais sont d'un emploi plus délicat et sont réservés aux étalonnages en laboratoire.

Si l'on utilise des pompes "volumétriques", dont le débit varie peu avec la perte de charge, il devient inutile de mesurer ce débit en permanence : en effet l'augmentation de perte de charge est le résultat du colmatage du filtre, qui a également pour effet d'accroître le rendement de filtration. Nous verrons plus loin que ce rendement est très difficile à connaître et que les variations de rendement et de débit se compensant approximativement, il est finalement plus simple, et plus exact, de supposer rendement et débit constants, que de mesurer le débit et de supposer le rendement seul constant.

II - 2/2.3 - Caractéristiques des filtres.

La plupart des filtres utilisés sont constitués par des fibres cellulosiques. Les aérosols sont retenus par deux processus différents : les plus fins diffusent pendant le passage de l'air dans le filtre et viennent ainsi se fixer sur les fibres, dans toute la profondeur du filtre, selon une loi que l'on peut déterminer, et qui dépend bien entendu de la texture du filtre, de la granulométrie des aérosols et de la vitesse des filets d'air. Les aérosols plus gros sont retenus par impact, ou plus simplement parce que leur taille ne leur permet pas de pénétrer dans le filtre. Les rendements de filtration sont donc excellents pour les aérosols fins (inférieurs à 0,1 µ) et pour les aérosols de diamètre plus gros (supérieur à 1 µ). Malheureusement, entre ces deux valeurs, c'est-à-dire pour une partie importante des aérosols radioactifs artificiels, les rendements de collection sont très inférieurs et peuvent atteindre des valeurs comprises entre 50 et 90 %.

Au fur et à mesure du pompage, les différentes poussières atmosphériques, radioactives ou non, viennent obstruer les orifices du filtre, et simultanément accroissent la perte de charge et le rendement de collection.

Il est, en principe, intéressant d'utiliser des filtres ayant un rendement de collection aussi élevé que possible, au départ, car la quantité d'aérosols recueillis est plus importante, et le rendement, voisin de 100 % au départ, n'est pas susceptible d'augmenter considérablement par suite du colmatage. Mais ces filtres, qui existent, présentent tous une perte de charge élevée, qui exige donc l'emploi de pompes puissantes, c'est-à-dire bruyantes ou onéreuses. Il est donc difficile d'équiper un réseau de stations de collection dans cet esprit. Le type et la puissance des pompes étant finalement imposés par des considérations non techniques, il devient alors plus avantageux, comme l'a prouvé Cochinal/C7/, d'utiliser des filtres de faible perte de charge, et dont le rendement est globalement voisin de 70 %, la quantité totale de radioactivité collectée étant finalement plus importante, et les variations du rendement de collection compensant, comme nous l'avons indiqué, celles du débit d'air.

Notons que l'ensemble des caractéristiques d'un filtre varie avec les conditions de son emploi : en particulier avec la vitesse du courant d'air, la température et le degré hygrométrique de l'air (bien que le papier soit en principe hydrofugé) et également avec la pression atmosphérique, par l'intermédiaire du libre parcours moyen des aérosols, mais surtout avec le degré d'empoussiérage de l'atmosphère.

Nous avons dans un grand nombre de cas utilisé le papier Poelmann-Schneider "bleu", qui est un papier de cellulose d'alpha et dont le rendement est de 65 % pour un aérosol standard de bleu de méthylène de diamètre moyen $0,3 \mu$ et pour un papier vierge*. Ce rendement peut dépasser 95 %, lorsque le filtre est partiellement colmaté. Des mesures de rendement par comparaisons avec un filtre considéré comme absolu (papier Poelmann-Schneider "rose") conduisent à adopter la valeur moyenne uniforme de 75 %.

D'autres installations utilisent du papier Schleicher et Schuell n° 2430 dont le rendement est de l'ordre de 70 % pour des particules de diamètre $0,4 \mu$, et varie de façon analogue à ce qui précède.

II - 2/2.4 - Réalisation d'ensembles de prélèvements.

Deux catégories générales d'appareils ont été réalisées dans le but de collecter et mesurer les aérosols radioactifs de l'atmosphère :

1° - Appareils à filtre fixe.

Ils se composent d'une pompe, un porte-filtres, et éventuellement un débitmètre. A la fin du prélèvement le filtre est retiré, éventuellement traité, puis mesuré dans des installations complètement indépendantes de l'appareil de prélèvements : le filtre peut très bien être mesuré à des milliers de kilomètres du lieu de prélèvement, à condition que les produits radioactifs auxquels on s'intéresse aient une période longue par rapport au temps nécessité par le transport (figure 1).

2° - Appareils à filtre mobile.

Ces appareils qui dérivent du collecteur d'aérosols imaginé par Labeyrie et Pelle /L2/, comportent un ruban de papier filtre qui se déroule devant une ouverture d'aspiration. Des compteurs peuvent être placés soit directement en face de cette ouverture, soit avec un décalage qui permet des mesures plus ou moins retardées. L'avantage de ce dispositif est que les produits à courte période sont mesurés aisément et automatiquement, et que les variations rapides de leur concentration dans l'atmosphère ne sont pas dissimulées par la radioactivité des aérosols déjà accumulés sur le filtre. Les inconvénients sont d'abord dans la difficulté de l'étalonnage du système, dans la quantité généralement plus faible d'aérosols recueillis par unité de surface du filtre (ce qui est un avantage du point de vue du colmatage, mais un inconvénient sérieux, lorsque la concentration atmosphérique des aérosols est faible), et surtout dans la quasi impossibilité de réaliser dans cet appareil même la mesure différée de plus de quelques jours. Enfin, cette dernière solution est sensiblement plus fragile et plus onéreuse que la précédente (en particulier le déroulement du papier filtre à vitesse linéaire constante est difficile à réaliser). Nous verrons plus loin que deux aménagements de cet appareil peuvent être effectués :

a) Mesure différée des bandes de papier filtre dans un appareil indépendant de l'appareil de prélèvement, ce qui permet d'accroître indéfiniment le délai entre mesure et prélèvement,

b) Transformation du mouvement continu de la bande de papier en déplacement périodique de la portion de la bande utilisée : on a alors l'équivalent d'un appareil à filtre fixe et changeur automatique, ce qui simplifie considérablement l'étude mathématique de la réponse de l'appareil à une variation de concentration, et son étalonnage, ainsi que l'expression des résultats.

II - 2/2.5 - Evaluation de l'erreur commise au cours des prélèvements.

Nous avons vu que le volume d'air prélevé, supposé représentatif, n'était en aucun cas connu à mieux que 10 % près. Les différentes causes d'erreurs, et compensations, que nous avons mentionnées peuvent aisément doubler cette imprécision qui atteint ainsi 20 à 30 %.

L'erreur commise dans l'évaluation du rendement du filtre est plus difficile encore à préciser, puisqu'elle varie beaucoup avec la granulométrie des aérosols et le colmatage des filtres. On peut également l'estimer à 20 %. Comme nous l'avons indiqué, ces erreurs ne s'ajoutent pas, puisqu'elles

* Pour un papier *strictement* vierge, le rendement peut être inférieur à 40 % mais après quelques minutes de filtration, on atteint cette valeur de 65 %. (cf. troisième partie).



Figure 1/IL 2 - Aspirateur à filtre fixe.

produisent des effets inverses. Les prélèvements apportent donc une erreur globale de l'ordre de 30 à 40 %, à la mesure de la concentration de l'atmosphère en aérosols radioactifs.

Ceci suppose évidemment que des précautions élémentaires ont été prises telles que d'éviter de placer l'appareil de prélèvement dans une zone riche en fumées ou en poussières soulevées du sol (par exemple au voisinage immédiat d'une route ou d'une piste d'aviation). Ce n'est pas toujours aisé lorsque les prélèvements sont effectués à bord de bateaux !

II - 2/3 - DISTINCTION ENTRE LES DIFFERENTES CATEGORIES D'AEROSOLS RADIOACTIFS

Nous avons vu, au chapitre I, que de nombreux aérosols radioactifs β étaient présents dans l'atmosphère. Toutefois, si nous étudions les concentrations extrêmes signalées dans la littérature, ou déterminées par nos mesures (voir plus loin), nous pouvons considérer que seuls interviennent quatre types de produits :

- 1/ Dépôt actif du radon à vie courte ($T \leq 26,8$ m)
- 2/ Dépôt actif du thoron ($T \leq 10,6$ heures)
- 3/ Produits de fission des explosions nucléaires ($60 \text{ heures} < T < 30 \text{ ans}$)
- 4/ Dépôt actif du radon à vie longue ($T \gg 22 \text{ ans}$)

La quatrième catégorie est mentionnée ici pour mémoire : le radium E (bismuth 210), descendant du radium D (Pb 210), seul émetteur β décelable, a généralement une concentration faible par rapport à celle des produits de fission. Les mesures effectuées à Saclay conduisent à une teneur moyenne de 0,0085 pCi/m³ (variable de 0,002 à 0,02) contribuant en général pour moins de 20 % à la radioactivité β globale en Janvier 1961, époque du minimum d'activité des produits de fission. Les valeurs indiquées dans la littérature sont généralement inférieures (cf. Tableau II chapitre II-1). Tous les éléments non mentionnés ci-dessus ont des concentrations beaucoup plus faibles, ou des rayonnements difficilement détectables, et n'interviennent donc pas dans la radioactivité β , telle que nous la mesurons usuellement.

La connaissance des constantes radioactives des radionuclides naturels et artificiels, dont l'ordre de grandeur est sensiblement différent, permet de distinguer les contributions de ces éléments. L'étude théorique complète de ce problème est présentée en annexe 1.

La conclusion de cette étude est que la simple mesure β globale permet après un délai variant de 1 à 5 jours après la fin du prélèvement, de distinguer entre la radioactivité des aérosols radioactifs naturels et artificiels. C'est la nécessité de ce délai de 5 jours qui rend illusoire l'emploi des appareils à filtre déroulant et mesure automatique : après 5 jours de délai, seules les mesures quotidiennes présentent en général une signification que les mesures horaires ont perdue (exception faite pour les régions proches d'un lieu d'explosion, pour les zones surveillées autour des centres atomiques ou pour certaines recherches particulières sur le comportement des aérosols dans l'atmosphère).

II - 2/4 - MESURE DE LA RADIOACTIVITE β DU PRELEVEMENT

Depuis la réalisation des premiers compteurs Geiger-Müller, on sait mesurer simplement la radioactivité β d'un échantillon. Les problèmes posés par nos propres mesures résultent de la difficulté de connaître le rendement exact des dispositifs de comptage utilisés, et d'autre part de la nécessité de réduire considérablement le mouvement propre de ces installations, pour permettre de mesurer des activités β extrêmement faibles (de l'ordre de quelques désintégrations par minute), avec une bonne validité statistique.

II - 2/4.1 - Mesures relatives de la radioactivité β globale.

L'impossibilité d'effectuer un grand nombre des mesures absolues d'activité β nous oblige à nous contenter de mesures relatives, c'est-à-dire au moyen de compteurs dont le rendement n'est pas 100 %, en raison de la géométrie de l'installation et des pertes de comptage dues à l'absorption du rayonnement β par divers écrans, difficiles à supprimer, ou dues à la faiblesse des impulsions électriques provoquées dans le compteur, par rapport au seuil de discrimination adopté.

A première vue, la géométrie du comptage devrait être reproductible : il faut toutefois tenir compte de la réflexion des rayons β , variable avec leur énergie, et qui finit par modifier indirectement le rendement géométrique.

D'autre part, il est difficile de choisir une substance qui puisse servir d'étalon universel de comptage : en effet le rendement physique du compteur varie pour les raisons que nous avons indiquées avec l'énergie des rayons β . Or, nous avons affaire à un mélange d'émetteurs d'énergies différentes dont la composition varie en fonction de l'âge des nuclides, mais aussi des matières fissiles dont ils proviennent, et de l'histoire des masses d'air en présence (par suite du fractionnement indiqué au § II - 1/7.4 et de la possibilité du mélange de nuclides d'âges différents).

Harley et ses collaborateurs /H2/ notamment ont indiqué que l'énergie moyenne du rayonnement variait en fonction de l'âge des produits de fission de la façon suivante :

Tableau I

Age des produits de fission	Energie moyenne du rayonnement
10 jours	0,32 MeV
80 jours	0,30 MeV
150 jours	0,28 MeV
2 ans	0,48 MeV

Toutes ces raisons font qu'il est impossible de choisir une substance exactement adaptée au spectre d'émission β des échantillons à mesurer. Nous avons choisi arbitrairement le potassium-40 (énergie maximale 1,35 MeV), en raison de sa facilité d'emploi et de la forme de son spectre β , intermédiaire entre celui des émetteurs énergiques et ceux de faible énergie : il est notamment assez voisin du spectre global du strontium-90 en équilibre avec son descendant, l'yttrium-90, et son énergie moyenne est de 0,40 MeV /M4/.

Toute transformation du spectre β de l'ensemble des émetteurs présents dans l'échantillon se traduira par une variation considérable du rendement de comptage. Par ailleurs, un enfoncement plus ou moins grand des particules de poussière dans le filtre, variable avec les conditions de la filtration (vitesse du courant d'air, dimension des pores variable avec le degré hygrométrique, colmatage, etc...) pourra également produire des erreurs de mesures non négligeables.

De la même manière, une variation d'épaisseur de la fenêtre d'entrée du compteur modifiera de manière différente le rendement de comptage, pour des émetteurs d'énergies différentes : une fenêtre de 1 mg/cm² produit une perte de comptage d'un facteur 2, dans le cas du césium-137 (énergie maximale 0,5 MeV) et 4 dans celui du cérium-144 (énergie maximale 0,3 MeV) par rapport au rendement mesuré pour le potassium-40.

Evidemment, un grand nombre de ces erreurs peuvent être éliminées si on effectue une séparation chimique des principaux émetteurs, puis la mesure de la radioactivité de chaque échantillon avec un rendement spécifique. Cette méthode exige malheureusement de longues opérations chimiques, et une multiplication des comptages. Un procédé plus simple consiste à compter séparément les particules d'une certaine bande d'énergie, au moyen d'un compteur proportionnel, puis à affecter cette bande d'énergie d'un rendement de comptage qui lui est propre : la somme des désintégrations comptées ainsi dans chaque bande d'énergie donnerait l'activité totale, avec une bien meilleure approximation. Toutefois, le matériel à mettre en oeuvre est nettement plus complexe que dans le cas d'un comptage β global ordinaire, et d'autre part l'activité dans chaque bande d'énergie sera faible, ce qui augmentera la durée du comptage, tout au moins dans le cas des bandes d'énergie où le mouvement propre risque d'avoir une plus grande importance relative. D'autre part, un tel dispositif n'éliminerait évidemment pas les erreurs dues à un enfoncement plus ou moins important des poussières dans le filtre.

Une version simplifiée de ce dernier procédé est réalisée, si l'on dispose d'un compteur dont le rendement varie peu en fonction de l'énergie du rayonnement β . Ceci impose une épaisseur de fenêtre très faible (de l'ordre de 0,1 à 0,5 mg par cm²) et un seuil de discrimination des impulsions électriques aussi bas que possible, sans élévation inadmissible du mouvement propre. Ces conditions peuvent être réalisées avec les compteurs à circulation de gaz et anti-coïncidence cosmique, qui permettent l'emploi de fenêtres en mylar aluminisé de quelques dixièmes de mg/cm², un seuil de discrimination bas, un mouvement propre faible, ainsi qu'avec les compteurs à scintillation, utilisant un scintillateur très mince.

II - 2/4.2 - Performances des appareils usuels.

Le type et les performances des ensembles de comptage β existant dans le commerce varient constamment. En ce qui concerne ceux que nous avons utilisés nous-mêmes, nous avons obtenu les performances suivantes, qui sont comparées dans le tableau à celles d'un dispositif mis au point dans notre laboratoire (voir § II-2/4.3), indiquées aux deux dernières lignes :

Tableau II

Type du compteur	Epaisseur de fenêtre (mg/cm ²)	Surface utile (cm ²)	Mouvement propre (c. p. m.)	Rendement (Potassium 40) (%)
G. M. L. C. T. sous 4 cm de plomb	2	7	14	18
G. M. Intertechnique	1	5	0,85	35
- d° -	1	20	2,5	35
Compteur à scintillations (anti-cosmique)	5	20	5,5	20 (3 % pour le Co-60 - 0,31 MeV)
- d° -	0,6	20	5	21 (5 % pour le Co-60 - 0,31 MeV)

II - 2/4.3 - Etude et réalisation d'un compteur à faible mouvement propre et de surface 100 cm².

Lorsque nous avons examiné le problème de la filtration des aérosols, nous avons vu, au § II - 2/2.3, que les principaux défauts des filtres résidaient dans leur perte de charge, d'autant plus élevée que leur rendement est meilleur, et dans le fait que cette perte de charge peut être encore accrue par suite du colmatage du filtre. Si l'on utilise les filtres de grande surface (100 cm², par exemple) le colmatage sera 10 fois plus faible que dans le cas d'un filtre de 10 cm², à volume d'air égal. D'autre part, le même compresseur pourra faire passer à travers le filtre vierge un volume d'air très supérieur : d'un facteur 1,5 à 2.

Evidemment, ces avantages ne demeurent réels qu'à la condition de pouvoir mesurer le filtre de 100 cm² aussi aisément que des filtres de petite surface. En absence de compteur Geiger-Müller de grande surface et faible mouvement propre (qui ont été développés depuis par divers laboratoires) nous avons dû mettre au point un compteur spécialement adapté à la mesure de ces filtres /B3//D7/, et dont l'étude et la description figurent en annexe 2.

II - 2/4.4 - Evaluation des erreurs de comptage commises.

II - 2/4.4.1 - Précision statistique du comptage.

La radioactivité d'un prélèvement effectué ainsi que nous l'avons décrit sera souvent assez faible : 2 à 5 désintégrations par minute, pour les volumes d'air prélevés, dans le cas des radioactivités les plus faibles. Il faut alors disposer de groupes de comptage à mouvement propre faible et assez stable pour permettre des mesures suffisamment prolongées pour obtenir un comptage brut statistiquement valable. Pour obtenir une précision statistique de 10 %, ce qui nécessite le comptage d'une centaine d'impulsions, on sera donc amené, compte tenu du rendement de comptage des désintégrations, à effectuer des mesures qui pourront durer plusieurs heures. Ceci a été réalisé dans le cas des prélèvements sur filtre fixe, ou tout au moins pour un certain nombre d'entre eux. Par contre dans le cas des filtres à déroulement continu, on est limité par la constante de temps de l'intégrateur électronique qui ne peut être rendue aussi grande qu'on le désire, et par la vitesse de déroulement du filtre sous le compteur.

Dans ce dernier cas, et lorsque la concentration des aérosols radioactifs est faible, les écarts statistiques de comptage pourront atteindre jusqu'à 50 %.

II - 2/4.4.2 - Erreurs d'étalonnage.

Nous avons indiqué les diverses sources d'imprécision qui découlent de l'insuffisance de nos connaissances concernant le spectre d'émission β d'un ensemble de produits de fission d'âge inconnu, et de la nécessité de choisir une substance étalon arbitraire.

A ces variations, il convient d'ajouter l'erreur sur l'étalonnage du compteur par le potassium 40, qui est de l'ordre de 10 %.

On voit donc que l'erreur de comptage " β global" est difficile à chiffrer, mais peut atteindre un facteur 2 en moyenne. Toutefois, dans le cas de nuclides assez anciens, l'âge des produits collectés variera fort peu d'un prélèvement à un autre : leurs spectres seront donc moins différents et les mesures seront plus comparables entre elles, sans toutefois que l'exactitude absolue soit améliorée.

II - 2/4.5 - Précision des mesures de concentration de l'atmosphère en aérosols radioactifs artificiels.

En conclusion, les valeurs absolues des concentrations indiquées dans ce travail doivent être considérées seulement à un facteur 2 près, l'erreur principale étant due à l'incertitude de la forme du spectre du mélange de produits recueillis. On a tenu compte dans l'estimation de cette erreur de l'imprécision due à la mauvaise connaissance du rendement de filtration, et à l'absorption plus ou moins importante du rayonnement β émis par le filtre, par suite de l'incrustation des poussières à une profondeur variable dans l'épaisseur du filtre.

Etant donné les caractéristiques du matériel utilisé, la reproductibilité des mesures entre des stations prises au hasard sera généralement de l'ordre de 30 à 40 % si l'on filtre de l'air contenant des aérosols ayant le même spectre β . Notons que ce chiffre tient compte de l'ensemble des causes de variation exposées. L'emploi de matériel identique, en un même lieu, conduit, comme nous le montrerons, à des reproductibilités de 5 % environ, entre différentes mesures effectuées sur des prélèvements faits simultanément.

Etant donnée l'imprécision de ces mesures, il nous est apparu illusoire d'effectuer sur les résultats indiqués la correction de rendement de filtration, de l'ordre de 30 %, dont devrait théoriquement tenir compte une évaluation générale des taux d'irradiation imputables aux aérosols radioactifs artificiels.

Nous verrons ultérieurement que l'ensemble des résultats obtenus vérifie bien les ordres de grandeur que nous venons d'indiquer.

II - 2/5 - DESCRIPTION DU RESEAU DE STATIONS DE PRELEVEMENTS ET DE MESURES DES AEROSOLS RADIOACTIFS

La description détaillée du matériel de prélèvement et de mesure et la liste complète des stations sont données en annexe 3. La répartition géographique des stations est indiquée sur les figure 2, pour la France et 3, pour le reste du monde.



Figure 2/II, 2 - Carte des stations de prélèvement des aérosols en France métropolitaine.

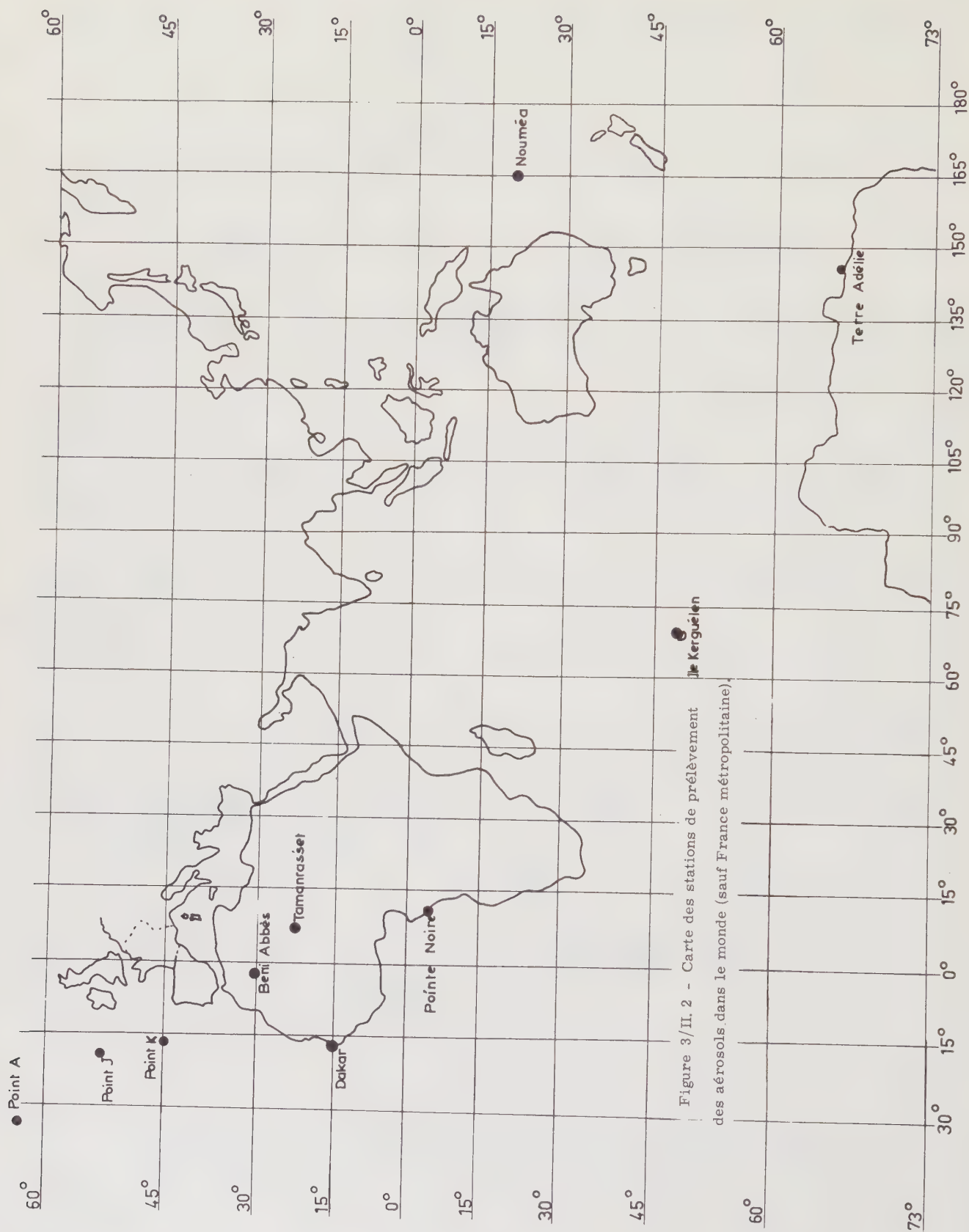


Figure 3/II. 2 - Carte des stations de prélèvement
des aérosols, dans le monde (sauf France métropolitaine).

CHAPITRE II. 3

RESULTATS DES MESURES DE CONCENTRATION DES AEROSOLS RADIOACTIFS NATURELS LOIN DES CONTINENTS

II - 3/1 - INTERET DE CES MESURES

Comme nous l'avons indiqué au chapitre II - 1, les aérosols formés par le dépôt actif du radon et du thoron se trouvent essentiellement concentrés dans les plus basses couches de l'atmosphère. Les concentrations rencontrées au voisinage des sources émettrices de radon et thoron dépendent essentiellement de l'intensité de ces sources et d'un ensemble de conditions locales de diffusion, au travers du sol et dans l'atmosphère. Par contre, loin de toute source émettrice, ce qui est réalisé au dessus des océans ou de territoires entièrement glacés, les concentrations mesurées ne dépendent plus que des conditions les plus générales de circulation et de diffusion dans les basses couches de l'atmosphère. La mesure de la concentration de ces aérosols doit donc donner, loin des continents, des indications directement interprétables sur ce type de circulation.

En particulier, les effets de la barrière équatoriale dont nous avons démontré l'efficacité (J. Labeyrie G. Lambert /L3/), doivent se faire particulièrement sentir ici (cf. chapitre II - 4)..

D'autre part, nous venons de voir (chapitre II - 2) que les concentrations en dépôt actif du radon et du thoron peuvent être directement interprétées par l'étude de la décroissance de la radioactivité β des filtres. Il sera donc possible, dans toutes les stations de prélèvements possédant leur propre matériel de mesure β , de mesurer la concentration des aérosols radioactifs naturels. Les stations les plus intéressantes seront donc celles qui sont installées à bord des frégates météorologiques (Points A, J et K), aux îles Kerguelen, et en Terre Adélie.

II - 3/2 - CONCENTRATION DU RADON AU DESSUS DE L'ATLANTIQUE NORD

Les études effectuées au point K par Fontan, Lambert et coll. /B8/ ont montré que le radon y était toujours en équilibre avec son dépôt actif. Nous pouvons étendre cette observation à l'ensemble des mesures effectuées et confondre ainsi la concentration du radon et celles des radiums B et C, effectivement mesurées.

Les résultats obtenus au cours de 36 campagnes, de un mois environ chacune, étalées entre Décembre 1959 et Juillet 1962 peuvent être résumés dans le tableau I ci-dessous. Seules sont indiquées les concentrations du radon, en pico-Curies/m³, le thoron n'ayant pratiquement jamais été mesurable.

Tableau I
Résumé des résultats obtenus aux points A, J et K

Lieu de prélèvement	Nombre de campagnes	Concentration du radon (pCi/m ³)			
		Moyenne mensuelle minimale	Moyenne mensuelle maximale	Valeur moyenne	Maximum enregistré
Point A	7	3	10	5,9	22
Point J	7	1	15	6,1	37
Point K	20	1,4	20,9	6,3	80
Point K	2	30	58	44	280

Deux observations très remarquables se dégagent de ce tableau :

1/ Le point K voit beaucoup plus souvent de hautes valeurs que les points J et A. Ce dernier point, situé le plus au Nord, montre les valeurs les plus régulières. On doit donc admettre que de nombreuses masses d'air d'origine continentale, peuvent atteindre le point K, où elles sont révélées par leur haute teneur en radon. Une étude des mouvements des masses d'air confirme que les valeurs les plus élevées sont obtenues dans le cas de masses d'air provenant du Nord-Ouest de l'Espagne (Fontan /F5/). Les points J et A plus éloignés des côtes seraient rarement atteints par des masses d'air d'origine continentale récente.

2/ Malgré cette disparité de comportement entre les trois points de mesure, les moyennes portant sur de nombreuses campagnes sont étonnamment voisines (exception faite pour deux valeurs très exceptionnelles rencontrées au point K). On doit admettre que cette valeur moyenne possède un sens physique profond : elle doit correspondre à la valeur de la concentration de radon observée loin des continents, dans le cas de diffusion atmosphérique maximale.

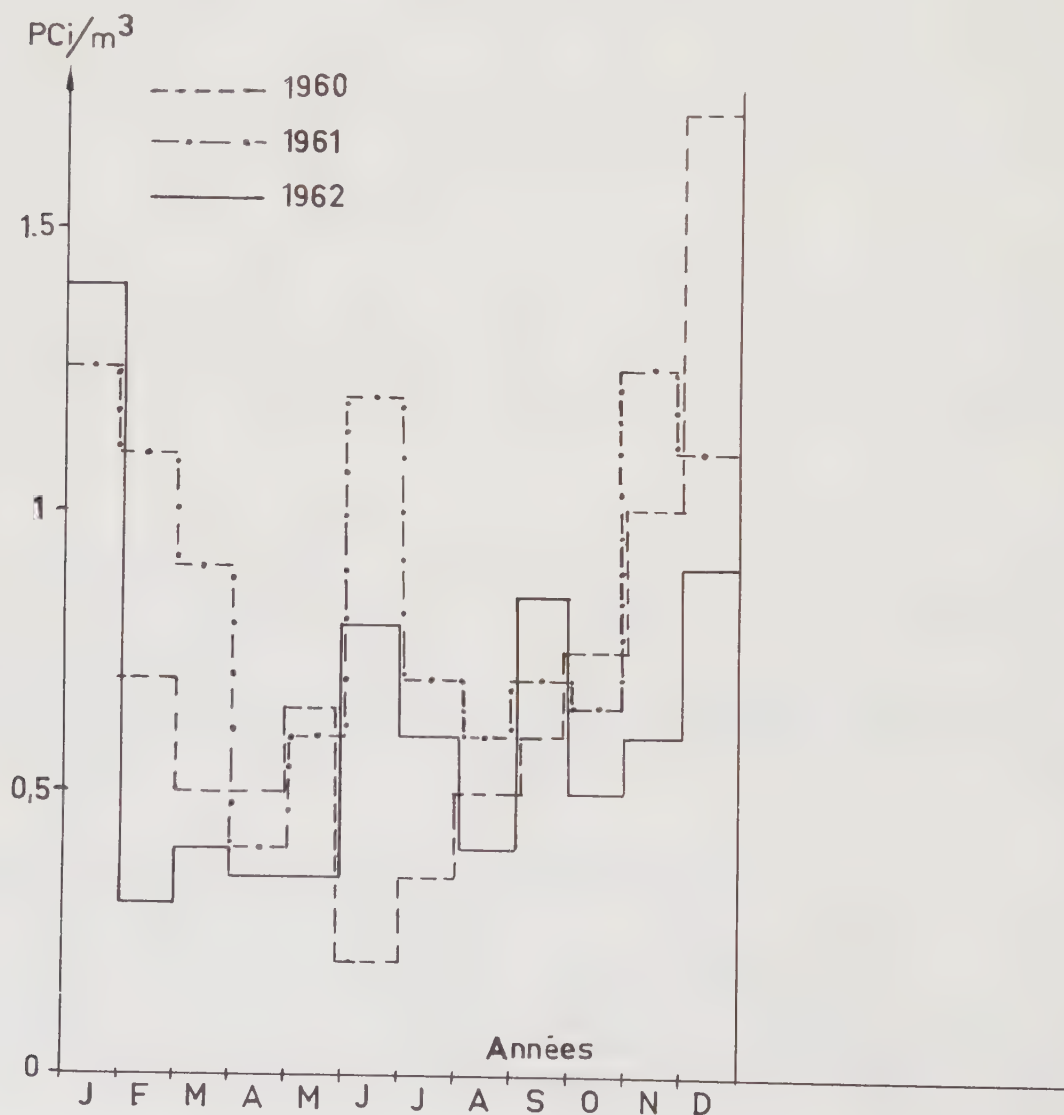


Fig. 1/II.3 - Concentration moyenne mensuelle du radon en Terre Adélie (G. Lambert et Coll. /L9/).

II - 3/3 - CONCENTRATION DU RADON EN TERRE ADELIE

Bien que la Terre Adélie soit située sur la côte d'un immense continent, on doit considérer que la concentration du radon y obéit aux mêmes lois qu'au centre des océans car la couverture de glace du continent antarctique est généralement trop importante pour permettre la diffusion du radon depuis le sol sousjacent. Une preuve en est que la concentration atmosphérique du thorium B est presque impossible à mesurer en Terre Adélie, et en tout cas inférieure à $0,01 \text{ pCi/m}^3$ (Lambert et Polian /L9/).

La figure 1 montre la variation annuelle de la concentration mensuelle moyenne en radon, au cours des années 1960, 1961 et 1962. Il semble que la concentration soit plus faible pendant l'hiver antarctique, ce qui serait expliqué par la formation à cette saison d'un anticyclone froid, extrêmement stable, interdisant toute pénétration des masses d'air venant du Nord, donc tout apport important de radon. Le niveau moyen mensuel est donc extrêmement bas, de l'ordre de $0,8 \text{ pCi/m}^3$, les valeurs moyennes mensuelles extrêmes enregistrées étant de $0,2$ et $1,7 \text{ pCi/m}^3$, avec une valeur maximale de $3,7 \text{ pCi/m}^3$ les 10 et 30 Décembre 1960 /L9/.

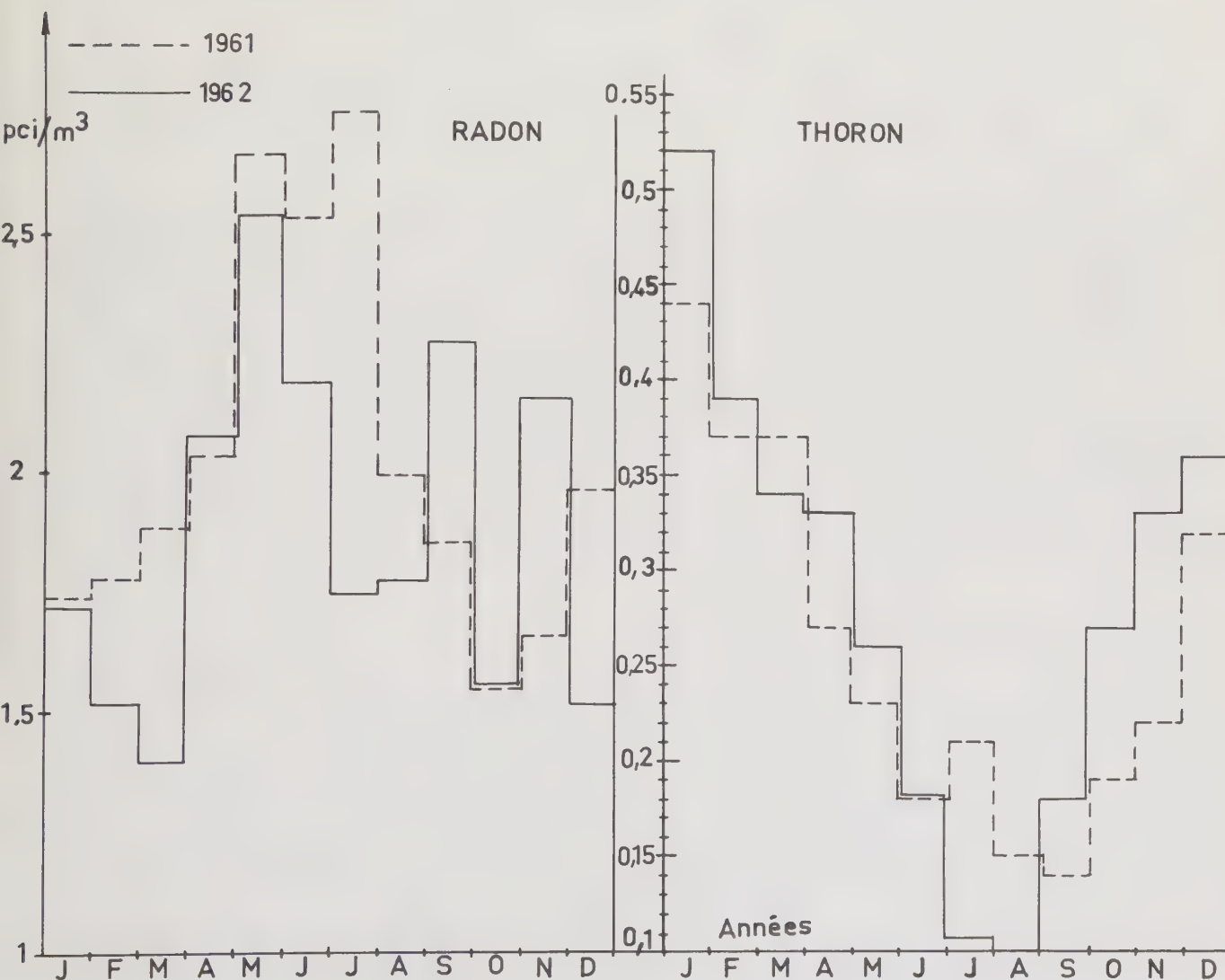


Fig. 2/II.3 - Concentration moyenne mensuelle aux Kerguelen (G. Lambert, G. Polian /L9/).

II - 3/4 - CONCENTRATION DU RADON AUX ILES KERGUELEN

Les îles Kerguelen, avec une superficie d'environ 6 000 km² ne peuvent pas être considérées, à priori, comme non émettrices de radon. Seule l'étude détaillée des variations de concentrations observées en radon et en thoron a pu nous montrer que si le thoron mesuré était de formation locale, par contre, le radon présent devait être, en majeure partie, diffusé depuis les continents les plus proches (G. Lambert, G. Polian /L9/).

La figure 2 montre les variations annuelles des concentrations moyennes mensuelles en radon et en thoron, au cours des années 1961 et 1962. On peut constater que la concentration de thoron présente un minimum saisonnier très net en Juillet et Août, mois qui correspondent aux températures les plus froides, accompagnées de précipitations et de vents particulièrement violents (résultant notamment de la formation de l'anticyclone antarctique dont nous parlions au paragraphe précédent). Il n'est pas surprenant que la concentration en thoron soit alors extrêmement faible puisque les effets de la forte turbulence atmosphérique s'ajoutent à ceux du gel qui interdit l'émission de thoron depuis le sol.

Au contraire, la concentration de radon augmente légèrement de Mai à Juillet, ce qui peut être attribué à la violence des vents qui amènent plus rapidement le radon depuis les continents éloignés, diminuant ainsi sa décroissance.

Une confirmation de l'origine locale du thoron est fournie par le fait que les concentrations les plus élevées sont observées par vent de secteur bien déterminé (Nord-Nord Ouest à Nord - Nord Est), ainsi qu'on peut le constater figure 3, ce qui correspond probablement à une région plus riche en minéraux thorifères. Aucune corrélation de ce genre n'a pu être mise en évidence dans le cas du radon.

Cette différence de comportement du thoron et du radon ne doit pas surprendre. En effet, la période du radon est environ 9 fois plus élevée que celle du thorium B, descendant du thoron dont la période est la plus longue. Par conséquent un filet d'air parcourant à vitesse constante une surface émettant uniformément du radon et du thoron, aura, à saturation, une concentration 9 fois plus élevée en radon qu'en thoron. Inversement, le raccourcissement du temps pendant lequel l'air peut se charger en radon ou en thoron, se fera sentir plus fortement sur le radon que sur le thoron. La concentration relative du radon par rapport au thorium B pourra à la limite être divisée par 9, si le point de prélèvement est soumis à une direction dominante des vents (cas des îles Kerguelen). Si la concentration en radon et en thorium B est due à une simple diffusion turbulente, par vent nul, c'est le coefficient 81 que l'on atteindra. Ainsi, on peut comprendre que relativement à la concentration de l'atmosphère en thorium B, les îles Kerguelen se comportent comme un continent, alors que pour le radon, elles sont une source ponctuelle dont la contribution est négligeable. Les concentrations de radon observées aux îles Kerguelen sont donc à peu de chose près celles qui règnent sur l'Océan Indien, loin des continents. La valeur moyenne pour les deux années 1961-1962 est de 2 pCi/m³, avec des valeurs moyennes mensuelles extrêmes de 1,5 et 2,8 pCi/m³ et une valeur maximale de 9 pCi/m³, le 26.8.61.

II - 3/5 - INTERPRETATION DES RESULTATS

Comme nous l'avons fait remarquer (G. Lambert, G. Polian /L10/), les résultats que nous avons indiqués sont conformes aux rares valeurs numériques relatives à la concentration en radon de l'air océanique, publiées par Lockhart /L22/, Piccioto /P3/ et Skorka /S5/.

L'ensemble de ces données nous permet d'admettre que la concentration moyenne du radon est de 6 pCi/m³ au dessus des océans de l'hémisphère Nord, et seulement 2 pCi/m³, dans l'hémisphère Sud. Or la superficie des terres émergées est respectivement de 90 et 35 millions de km² dans ces deux hémisphères (en comptant pour "océaniques" les zones de latitude supérieure à 65°, qui sont généralement glacées, et n'émettent donc pas de radon). On voit que le rapport de ces superficies est approximativement le même que celui des concentrations en radon de l'air océanique.

Il est remarquable d'autre part que les concentrations observées au dessus de l'océan soient de 15 à 50 fois plus petites que les concentrations usuelles au dessus des continents, qui sont de l'ordre de 100 pCi/m³/S1//S2/. Cette différence peut être expliquée, si le temps τ nécessaire au radon pour diffuser depuis les continents est suffisant pour qu'une partie importante du radon se soit désintégrée. Dans un hémisphère, on doit avoir :

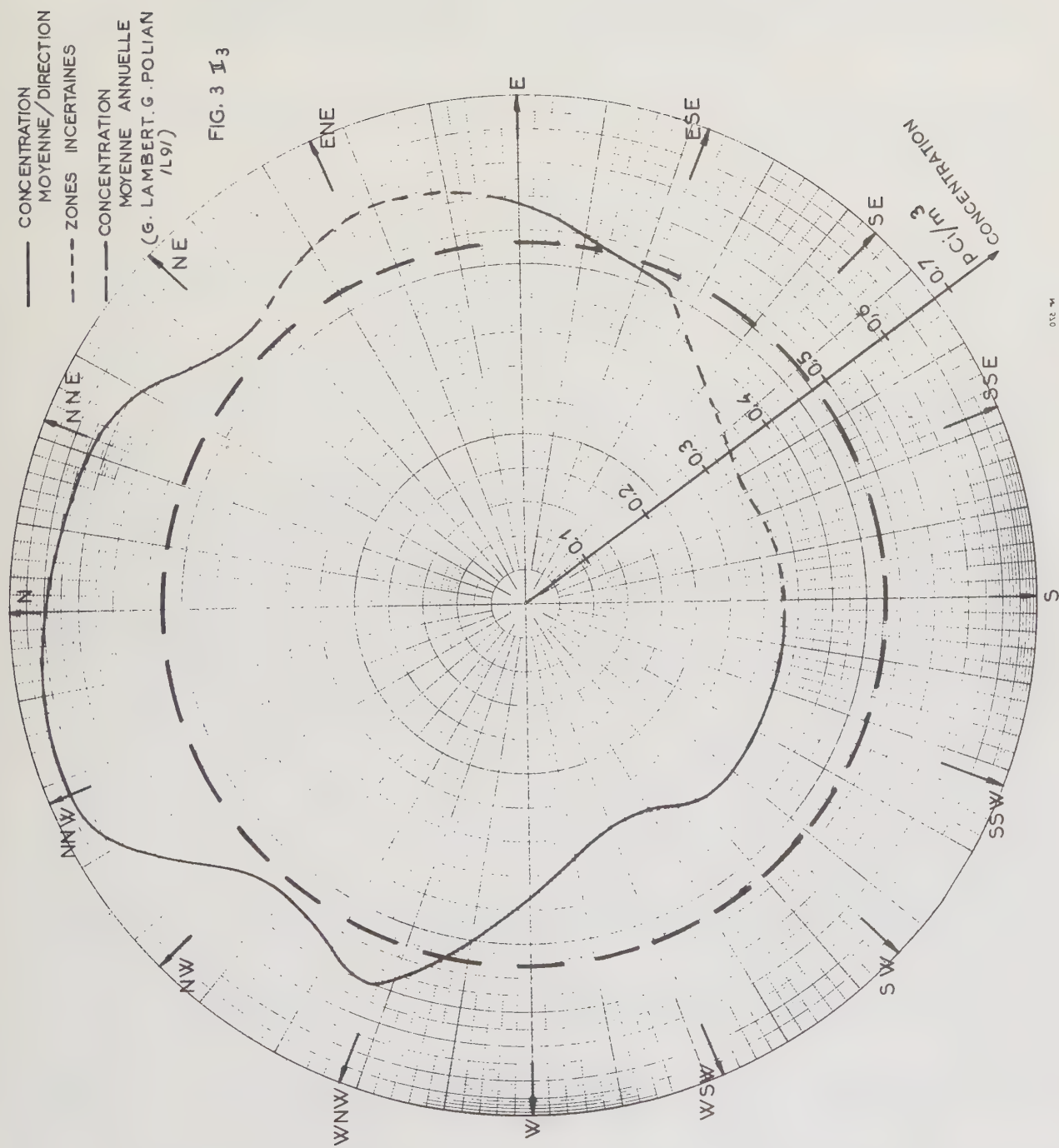


Fig. 3/II.3 - Concentration moyenne du thoron aux Kerguelen par direction (1961) pCi/m³.

$$S_1 q_0 e^{-\lambda \tau} = S_1 q_1 + S_2 q_2$$

où S_1 et S_2 sont respectivement les superficies des terres émergées et des océans

q_1 et q_2 les concentrations en radon

q_0 la concentration que l'on aurait au dessus des continents en absence de diffusion vers l'océan.

Cette valeur q_0 est inconnue, mais on peut la lier au taux superficiel de dégagement du radon

$$\Phi = 35 \cdot 10^3 \text{ pCi/m}^2\text{-jour} \quad /S_1/$$

et la hauteur équivalente de l'atmosphère contenant une concentration homogène de radon, h , que nous supposons égale à 100 m :

$$q_0 = \frac{\Phi}{\lambda h}$$

On trouve alors :

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \text{Log}_e \frac{\frac{\Phi}{\lambda h}}{q_1 + \frac{S_2}{S_1} q_2}$$

ce qui donne pour l'hémisphère Nord $\tau_N = 4,8$ jours

et pour l'hémisphère Sud $\tau_S = 4,6$ jours

Si nous remarquons qu'à l'exception de λ , tous les paramètres interviennent par l'intermédiaire d'un logarithme, c'est-à-dire qu'une importante erreur sur l'estimation de ces paramètres modifierait peu la valeur numérique de τ , on peut penser que cette valeur de 5 jours environ est certainement très voisine de la durée moyenne nécessaire à l'homogénéisation des masses d'air continentales et maritimes, compte tenu de la dispersion des continents à la surface d'un hémisphère.

Le fait de trouver pour τ_N et τ_S des valeurs voisines est mathématiquement peu surprenant : c'est lui qui explique que la concentration de radon au dessus des océans soit proportionnelle à la superficie des terres émergées. Physiquement, la répartition des continents étant beaucoup moins homogène dans l'hémisphère Sud que dans l'hémisphère Nord, cela implique une vitesse moyenne des vents plus élevée dans le premier cas, ce qui est conforme aux données de la météorologie.

Notons, pour finir, que ces résultats nous permettent de tirer trois conclusions très générales, relatives à la circulation atmosphérique à très basse altitude :

1/ Ils confirment pleinement l'existence d'une barrière équatoriale entre les deux troposphères, Nord et Sud,

2/ Ils indiquent que l'homogénéisation des masses d'air, à grande échelle, est un phénomène extrêmement rapide,

3/ Ils montrent, par opposition que dans certains cas des masses d'air limitées peuvent parcourir des distances relativement grandes, sans diffuser de façon notable, donc en conservant tous les éléments qui y sont incorporés, avec une faible dilution.

CHAPITRE II. 4

RESULTATS DES MESURES DE RADIOACTIVITE ARTIFICIELLE DANS LA BASSE ATMOSPHERE

II - 4/1 - CARACTERES GENERAUX DE CES RESULTATS

Si nous nous reportons aux résultats exposés au cours des trois chapître précédents, nous pouvons établir une nette différence entre les caractères les plus généraux de la contamination de l'atmosphère par les aérosols radioactifs naturels d'une part, et artificiels d'autre part.

II - 4/1.1 - Dans le cas des aérosols radioactifs naturels (qui sont essentiellement constitués par le dépôt actif du radon et du thoron) :

1) leur introduction dans l'atmosphère a un caractère permanent, soumis à des variations saisonnières, quotidiennes ou instantanées, mais reproductible, dans ses grandes lignes, d'une année à l'autre.

2) si l'on ne tient pas compte des concentrations extrêmement faibles de radon stratosphérique, on peut dire que seules les plus basses couches de l'atmosphère sont contaminées.

3) la concentration observée en un point dépend essentiellement de la perméabilité du sol au radon et des conditions météorologiques locales qui fixent la stabilité verticale de l'atmosphère. Les masses d'air maritimes ou continentales présentent des concentrations fondamentalement différentes et les effets de latitude traduisent essentiellement la répartition inégale entre les terres émergées et les océans, et le degré d'inondation du de glaciation du sol.

4) les nuclides qui constituent les émetteurs radioactifs naturels principaux, sont en petit nombre et la composition du mélange radioactif varie peu d'un endroit ou d'un instant à un autre.

II - 4/1.2 - Dans le cas des aérosols radioactifs artificiels, nous avons au contraire les caractères généraux suivants :

1) Leur introduction dans l'atmosphère a un caractère accidentel et foncièrement irrégulier. Ainsi nous pouvons distinguer les cinq périodes successives suivantes :

a) Avant Juillet 1945 : absence de toute contamination.

b) De Juillet 1945 à fin 1951 : explosions par fission, limitées en nombre et en puissance.

c) De 1952 à Novembre 1958 : explosions puissantes et nombreuses comportant une proportion élevée d'explosions thermonucléaires.

d) De Décembre 1958 à Août 1961 : période de rémission seulement troublée par quatre explosions nucléaires par fission, de faible puissance (globalement inférieure au dixième de la puissance des explosions de la période b).

e) De Septembre 1961 à fin 1962 : nombreuses explosions de fission ou thermonucléaires atteignant des puissances beaucoup plus considérables que dans aucune des périodes précédentes.

L'ensemble de ces données est résumé dans le tableau I ci-dessous /T3/, /A6/.

2) Si nous nous reportons au tableau V du chapître II - 1, et compte tenu des puissances considérables mises en jeu, plus particulièrement au cours des périodes "c" et "e", nous pouvons penser que la plus grande partie des aérosols radioactifs artificiels est introduite dans la stratosphère. Cette opinion est largement confirmée par l'inventaire du strontium 90 présent dans la stratosphère au premier semestre 1959, reproduit dans le tableau II ci-dessous /S9/ /S4/.

Principales périodes d'injection de produits de fission dans l'atmosphère

Mois et Années	U.S.A.	U.R.S.S.	U.K.	FRANCE	Puissances (Mégatonnes)	
					Fission	Fusion
1945					0,76	0
1946						
1947						
1948						
1949						
1950						
1951	   				38	22
1952	   					
1953	   	   	   			
1954	   	   	   			
1955	   	   	   		13,1	15
1956	   	   	   			
1957	   	   	   		40	45
1958	   	   	   			
1959					0	0
1960				   	0,07	0
1961				   		
1962	   	   				

Tableau II
Quantité de Sr 90 dans l'atmosphère au 1er semestre 1959

Altitude	Hémisphère Nord	Hémisphère Sud	Total
> 30 km	0,20	0,19	0,39
20 à 30 km	0,27	0,15	0,42
Tropopause - 20 km	0,38	0,13	0,51
Total stratosphère	0,85	0,47	1,32
Total troposphère			0,03
Total retombé au sol			5,00

3) La répartition géographique des aires des explosions est encore plus irrégulière : à l'exception des essais britanniques de la période "b", et dans une certaine mesure des essais américains de la période "e", toutes les explosions nucléaires ont eu lieu dans l'hémisphère Nord et plus particulièrement entre 40 et 75 degrés de latitude Nord /T3/. Le nombre total de ces aires d'explosions est d'ailleurs fort limité. La concentration des aérosols radioactifs artificiels en un point dépendra donc des lois qui régissent la circulation la plus générale des masses d'air et en particulier de la possibilité des transferts stratosphère-troposphère, de la latitude de la station de prélèvements, et seulement en dernier ressort, des conditions météorologiques locales ou de la provenance maritime ou continentale des masses d'air.

4) Si nous nous reportons aux données qui figurent au chapitre II - 1, et plus particulièrement aux tableaux IV et V ainsi qu'à la figure 5, nous constaterons que l'ensemble des nuclides radioactifs artificiels présents dans l'atmosphère sous forme d'aérosols est extrêmement complexe, et que leurs proportions sont susceptibles de varier de façon considérable, notamment en fonction du temps. Il est donc en général impossible de confondre l'activité et la concentration atmosphérique des aérosols radioactifs artificiels, l'activité des produits jeunes étant toujours beaucoup plus élevée, à concentration égale, et leur contribution à la radioactivité artificielle globale des aérosols, toujours prépondérante.

Ainsi les périodes où des explosions nucléaires se produisent, ou viennent d'avoir lieu, seront caractérisés en général par une augmentation importante de la radioactivité artificielle des aérosols.

II - 4/2 - VALIDITE DES RESULTATS OBTENUS

II - 4/2.1 - Dans la plupart des stations de prélèvements des aérosols, on a effectué des mesures moyennes journalières de leur radioactivité. Dans quelques cas particuliers, des mesures moyennes sur 6 heures et même sur 3 heures ont été effectuées. Dans de nombreux cas, jusqu'en fin 1961, les mesures moyennes portaient sur 3 à 4 jours (cf. Lambert et coll. /A10/). Si nous examinons les figures 1 à 6, on constate que des fluctuations très importantes peuvent se produire dans les résultats relatifs à deux ou plusieurs mesures consécutives. Quelle que soit la signification profonde de ces fluctuations à court terme, elles sont trop généralement rencontrées pour ne pas compliquer sensiblement l'étude de l'évolution générale, dans le temps, de la radioactivité artificielle des aérosols. Très souvent, ces fluctuations ne seront pas reproductibles d'une station à une autre, même si ces dernières sont relativement peu éloignées (20 à 200 km, par exemple). Dans certains cas au contraire des corrélations géographiques ou chronologiques apparaissent, ainsi qu'on peut le constater figure 7. On voit sur ce graphique, relatif au mois de Juillet 1960, que les valeurs moyennes journalières trouvées dans les stations de Lille, Nancy, Rennes, Tours et Dijon ne sont nullement corrélées, à l'exception du pic du 2 Juillet, et dans une moindre mesure des 8 et 13 Juillet.

Ainsi se trouve posé le problème de définir quelle est la représentativité d'une station, du point de vue géographique, et quelle période de temps sera assez longue pour intégrer les fluctuations non significatives de l'évolution générale de la radioactivité artificielle, tout en restant courte devant la durée des phénomènes caractéristiques de cette évolution. Il va de soi que deux stations appartenant à la même région géographique doivent avoir, pour la période significative adoptée, les mêmes valeurs moyennes, aux erreurs de reproductibilité près, c'est-à-dire (voir chapitre II - 2 § 4/5) à mieux que 40 % près.

Cette étude sera reprise en détail dans la section II - 4/6.

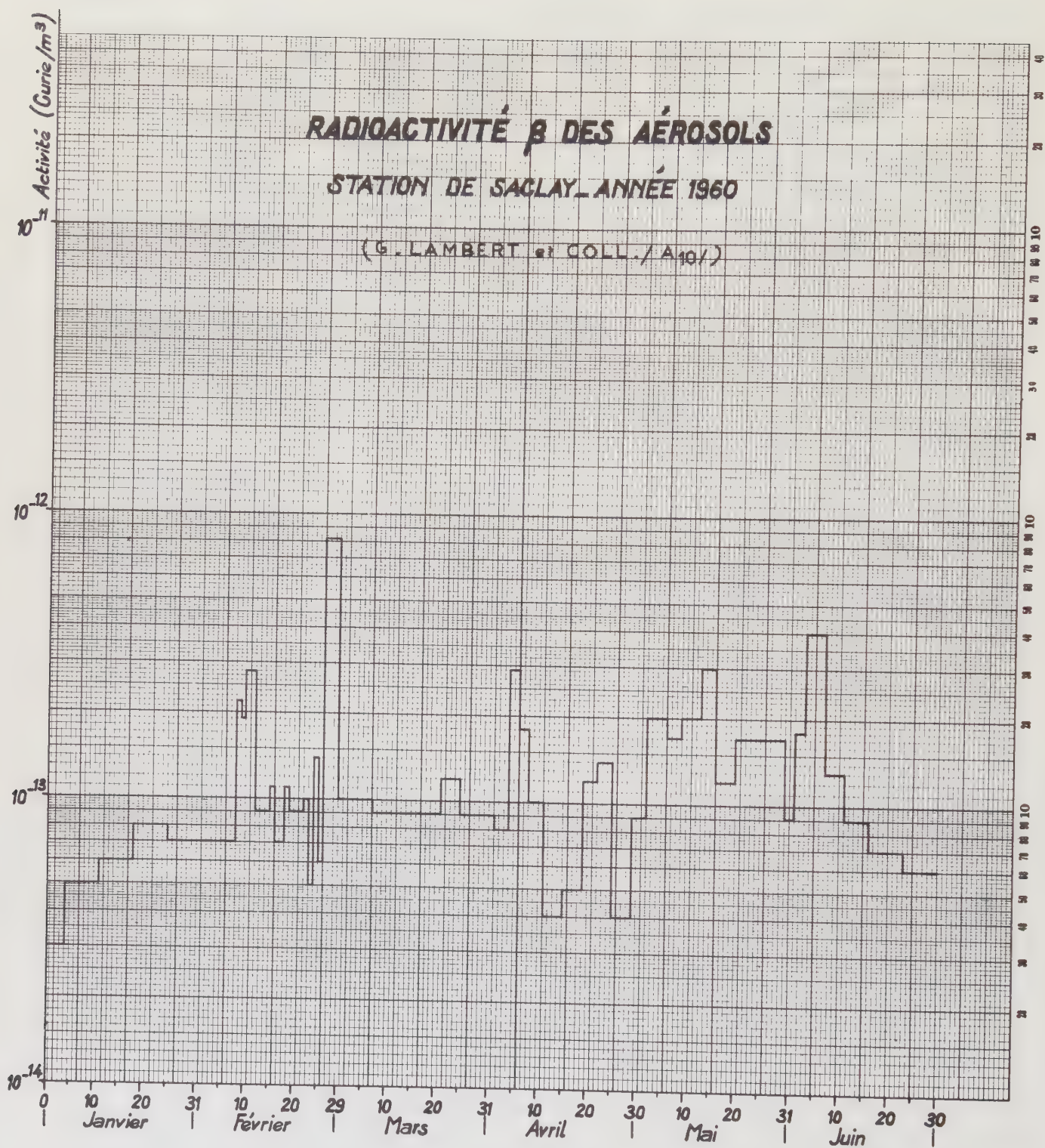


Fig. 1/II. 4

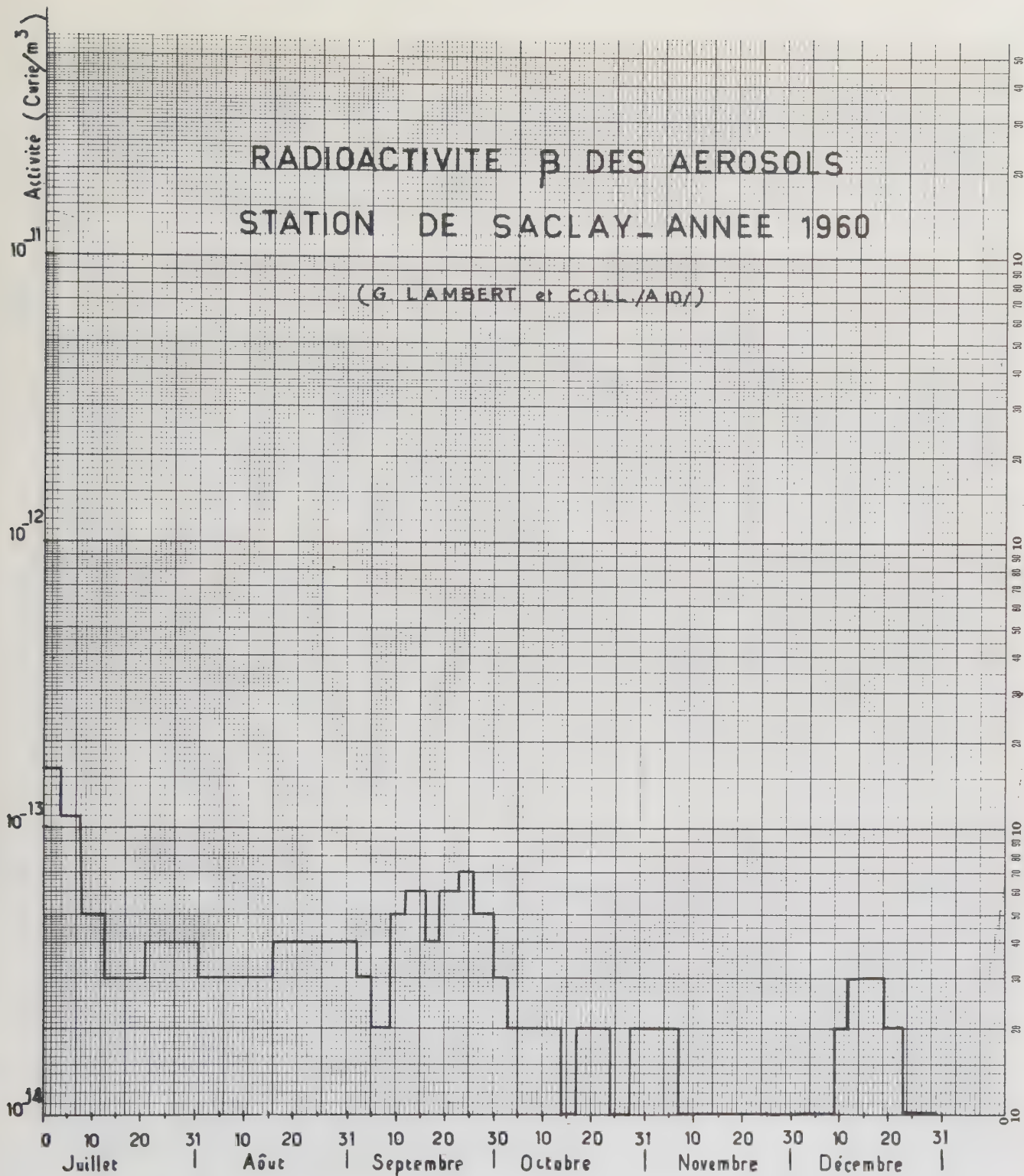


Fig. 2/II. 4

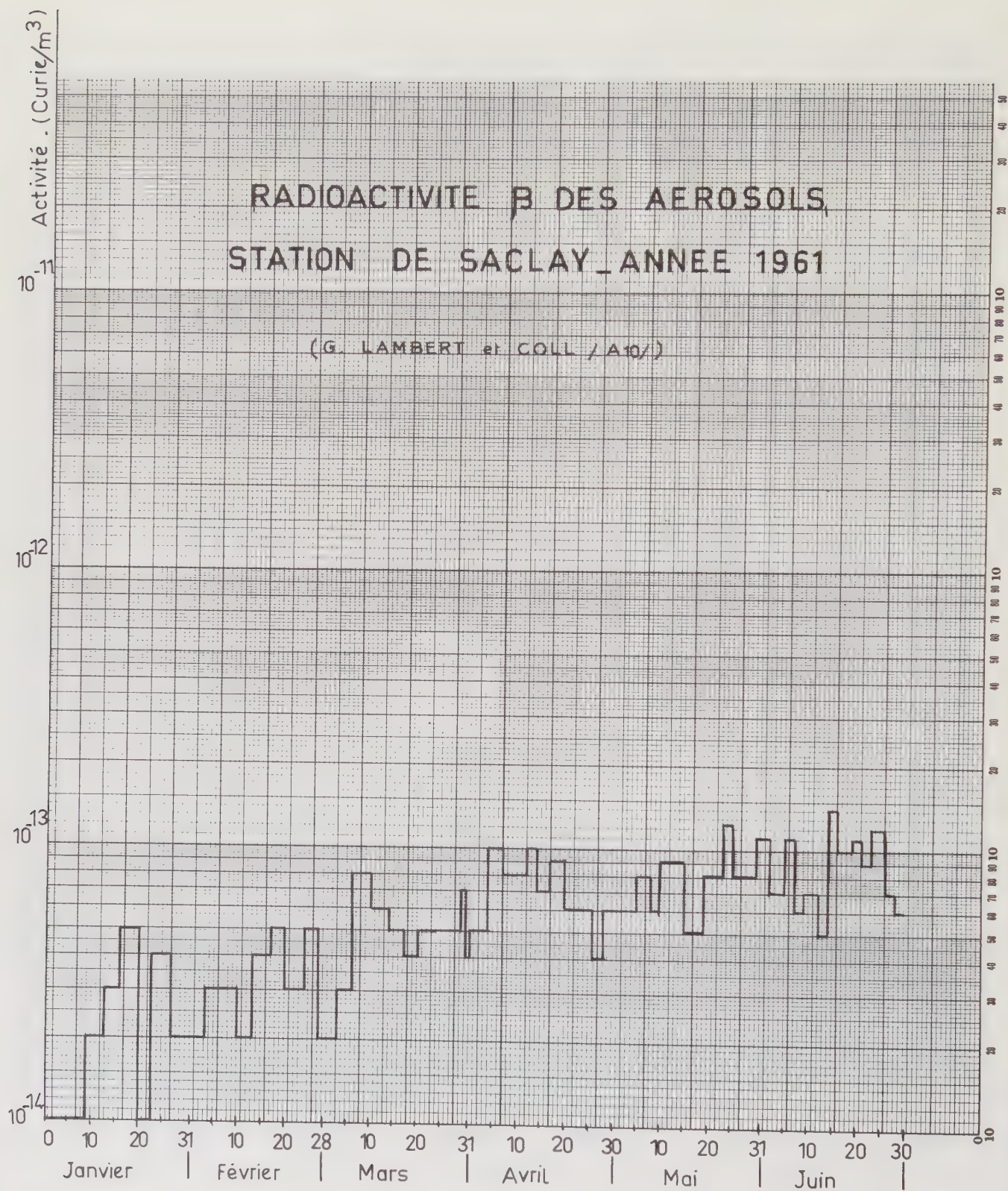


Fig. 3/II. 4

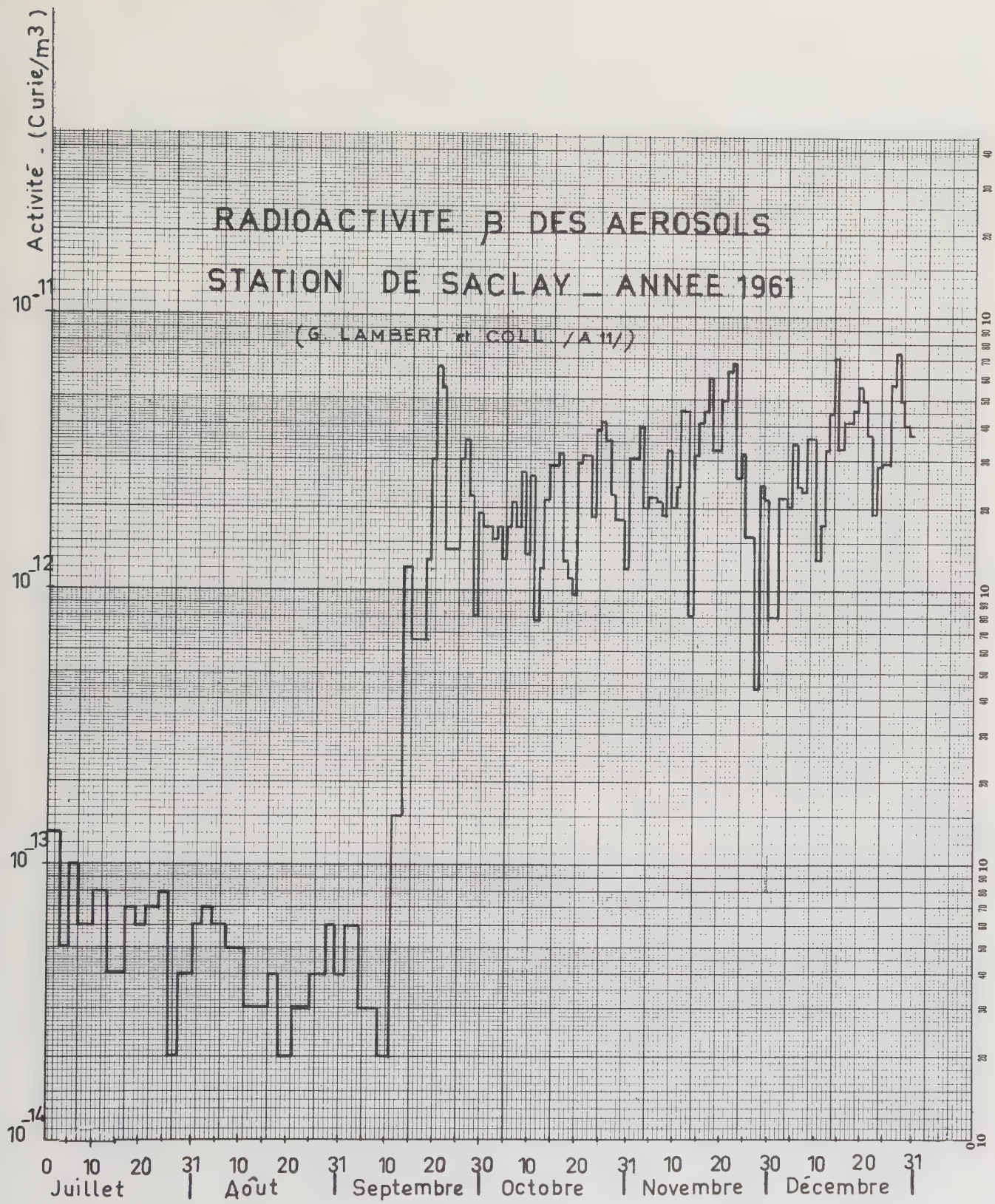


Fig. 4/II.4

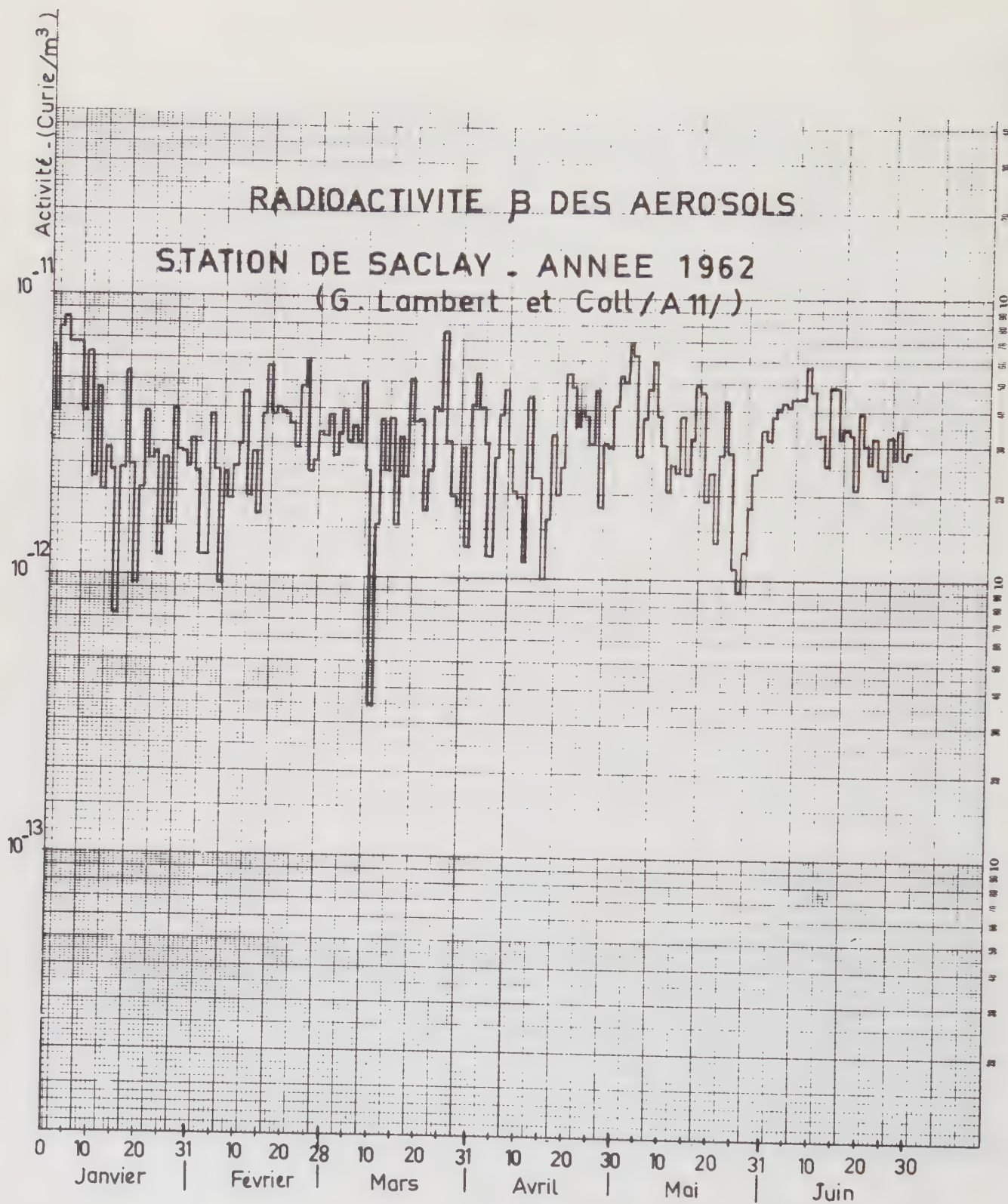


Fig. 5/II.4

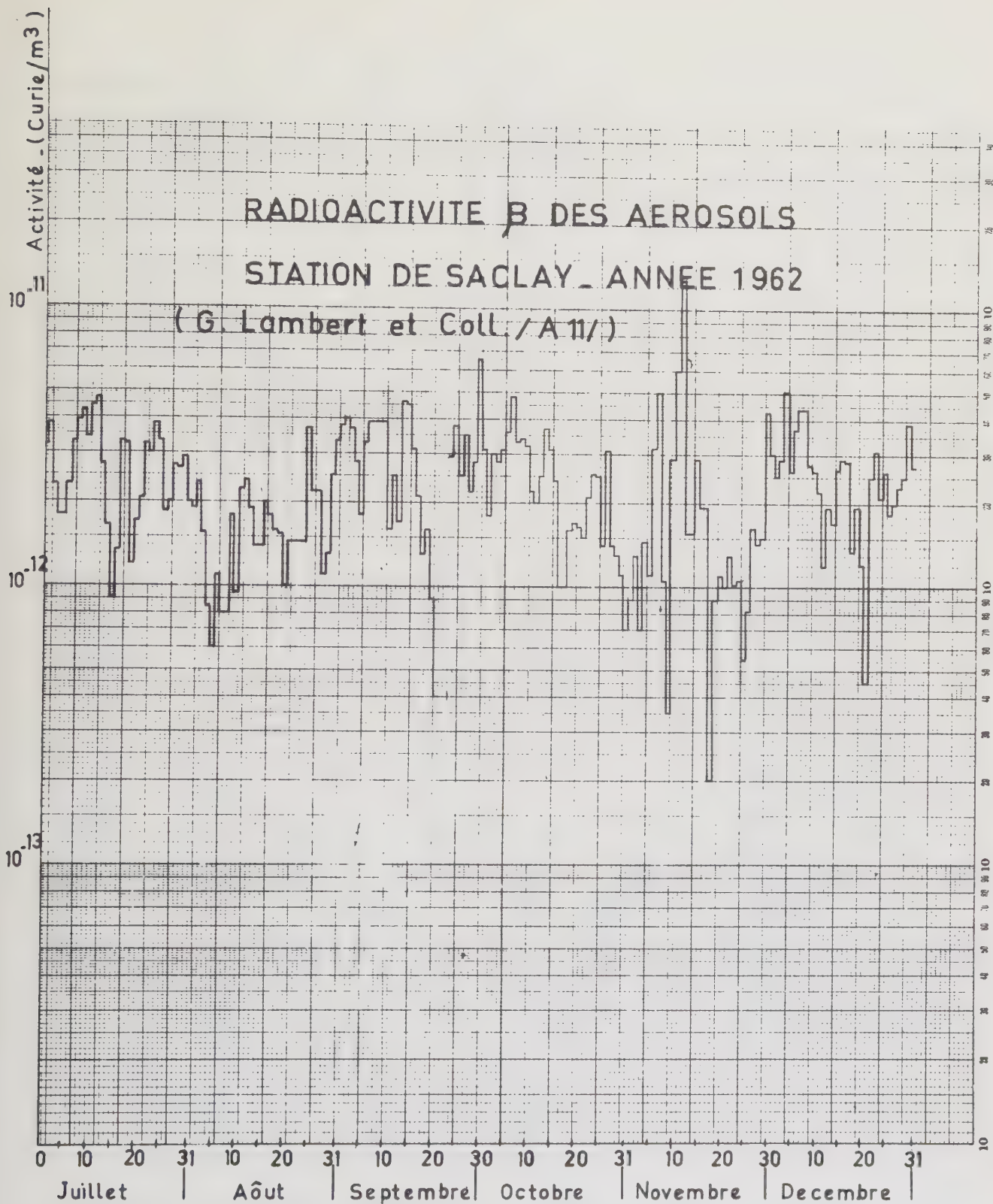


Fig. 6/II. 4

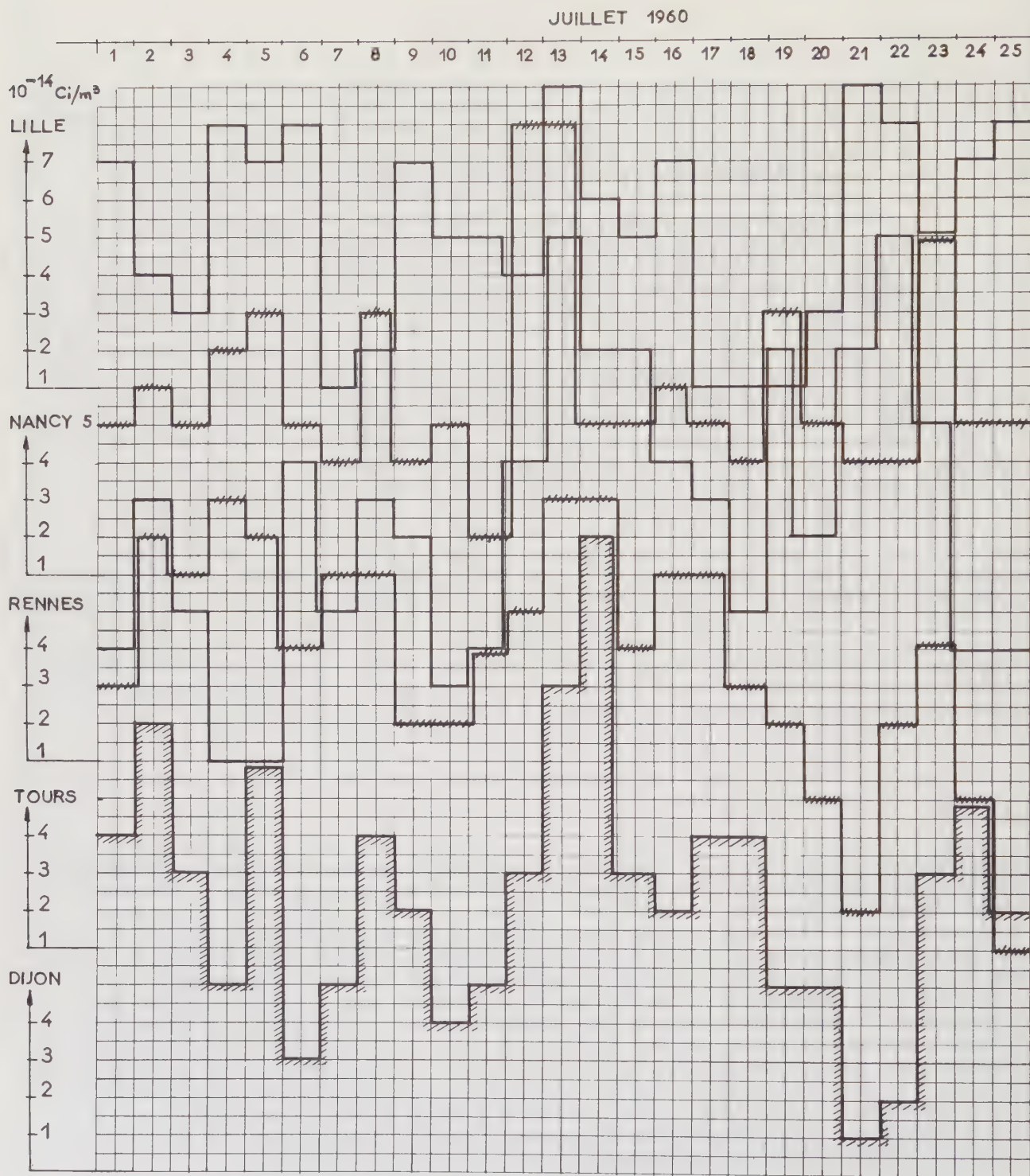


Fig. 7/II.4 - Diagramme des variations quotidiennes de la radioactivité β globale des aérosols pour différentes stations françaises (G. Lambert et Coll./A10/).

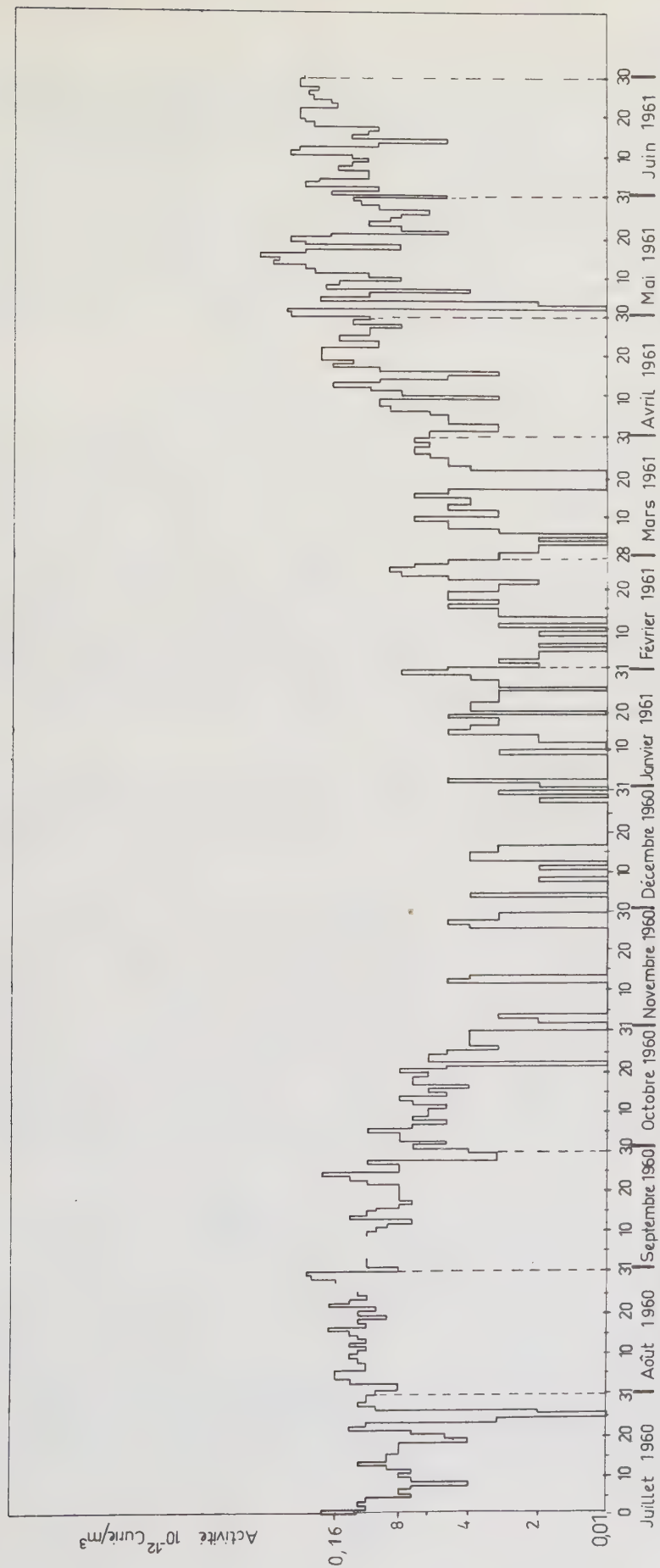


Fig. 8/II. 4 - Radioactivité β des aérosols, Station de Bordeaux (G. Lambert et Coll. /A10/).

II - 4/2.2 - Signification de la moyenne mensuelle.

Si nous nous reportons à nouveau aux figures 1 à 7, nous pouvons constater que les mesures moyennes portant sur 3 ou 4 jours fluctuent sensiblement moins que les mesures quotidiennes. La plupart des augmentations ou diminutions d'activité se produisent en 3 à 4 jours, si bien qu'une période d'un mois représente un certain nombre de ces fluctuations à court terme, d'où, pour la moyenne mensuelle une validité suffisante.

D'autre part, nous constatons qu'une période de temps plus longue déborderait la durée des fluctuations saisonnières (ou à moyen terme) visibles sur la figure 8. Ainsi une durée de un mois se révèle une excellente base pour l'établissement de moyennes statistiquement valables (c'est-à-dire aussi dépourvues que possible de caractère aléatoire). Cette durée est également du même ordre de grandeur que les temps de demi nettoyage de la troposphère, et que la durée des principales séries d'explosions, et de plus, d'un emploi particulièrement commode pour la présentation des résultats.

II - 4/2.3 - Etendue géographique représentée par une station.

L'aspect aléatoire des variations à court terme, joint à l'absence fréquente de corrélations entre les moyennes quotidiennes obtenues dans des stations peu éloignées nous amène à nous demander quelle est la validité de la mesure effectuée sur un prélèvement, dans une station déterminée, c'est-à-dire si les facteurs locaux ne déterminent pas de façon prépondérante la concentration observée, et même si ces mesures ont un sens, c'est-à-dire, si plusieurs appareils de prélèvements situés dans le voisinage immédiat auraient donné le même résultat.

II - 4/2.3.1 - Une expérience a été réalisée dans ce sens à Saclay et a conduit à des résultats qui différaient généralement de 5 à 10 %, d'un appareil à l'autre (pour des appareils de prélèvement identiques). Les plus grandes différences, atteignant 25 %, ont été obtenues lorsque les aérosols radioactifs artificiels étaient de formation très récente, et peuvent être attribués à la présence de grosses poussières très active. Chacun de ces prélèvements durait 6 heures et le volume d'air filtré était de l'ordre de 60 m³. Pendant la période "d", où la radioactivité des aérosols était plus faible, des écarts atteignant 30 et 40 % ont été enregistrés dans certains cas, et proviennent des erreurs statistiques de comptage.

Mentionnons qu'une expérience à beaucoup plus grande échelle a été réalisée ultérieurement sous la direction de Doury et Monnet (1962) /D6/. Une dizaine d'appareils de types très différents ont été groupés à Saclay et mis en fonctionnement parallèle. Une fois supprimées différentes causes d'erreurs assez grossières, ces auteurs ont montré que la reproductibilité de ces appareils était meilleure qu'un facteur 2.

II - 4/2.3.2 - Nous avons également examiné avec une attention particulière la répartition verticale des aérosols radioactifs artificiels à Saclay. Cette série de mesures a été entreprise afin de vérifier s'il était possible que les nuclides radioactifs artificiels déjà déposés sur le sol soient remis en suspension, par suite de la turbulence de l'air et de l'existence de courants ascendants au milieu de la journée. Nous avons donc effectué pendant plusieurs mois quatre prélèvements simultanés, le long de la tour météorologique de Saclay, aux niveaux 0 - 50 - 75 et 100 m. Les prélèvements étaient effectués sur filtre fixe, changé automatiquement toutes les 6 heures. Les filtres étaient au niveau du sol, et l'air était prélevé par l'intermédiaire d'un tuyau métallique de 10 cm de diamètre, dressé verticalement contre le pylone. Des mesures préalables effectuées au niveau du sol, à travers les tuyaux placés horizontalement ont montré que la perte d'aérosols restait inférieure à 10 % pour le plus long des quatre tuyaux, et pour les aérosols radioactifs naturels particulièrement fins. Nous donnons ci-dessous dans le tableau III, et figure 9, un aperçu des résultats obtenus.

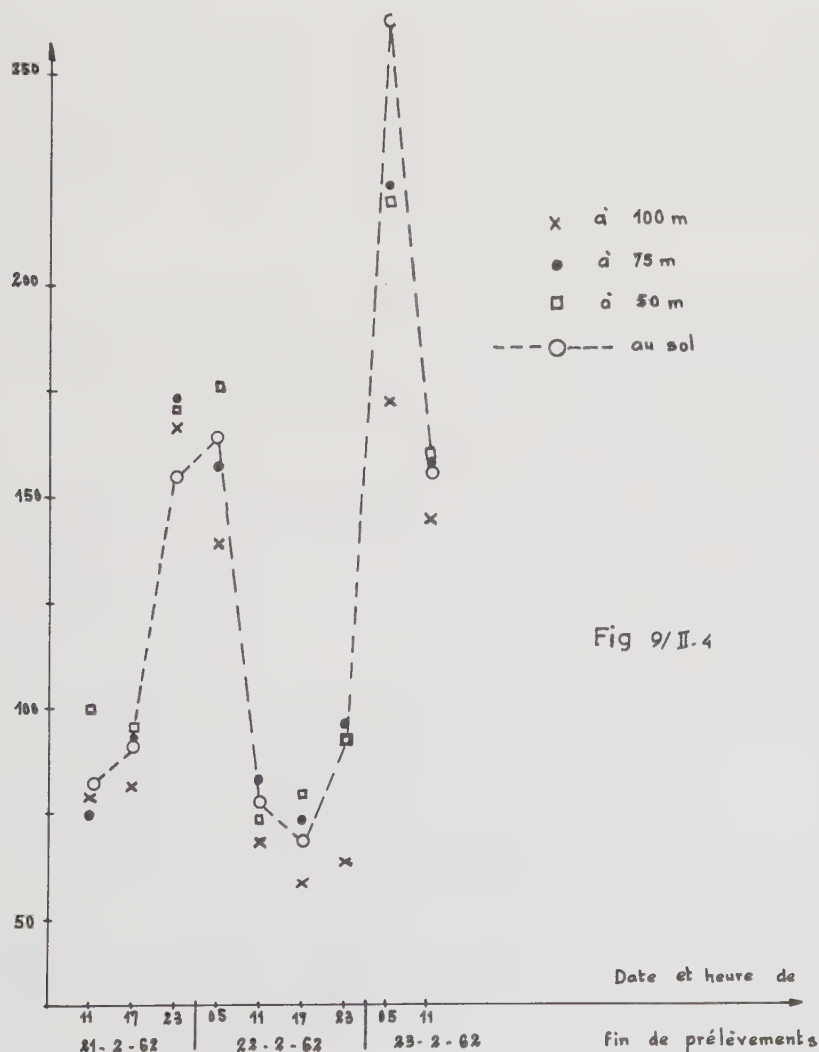
Nous constatons sur ce tableau III et figure 9 que, malgré les variations très importantes enregistrées entre deux mesures consécutives, qui dépassent souvent un facteur 2, les quatre installations en marche donnent des résultats qui diffèrent en général de 10 à 15 %. Le caractère systématique des différences enregistrées a été expliqué par de légères différences de débit des pompes utilisées, et, en ce qui concerne les prélèvements au niveau 100 m, par une certaine absorption le long des parois du tuyau d'aspiration. Les mesures ont été poursuivies pendant tout le mois de Mars 1962 sans que les conclusions tirées du tableau III aient lieu d'être modifiées.

L'absence de gradient vertical dans les 100 premiers mètres de l'atmosphère montre que la remise en suspension des aérosols depuis le sol ne contribue que pour une part absolument négligeable à la radioactivité de l'atmosphère au niveau du sol. Ce résultat est tout à fait logique, car les aérosols, déjà précipités au sol n'ont aucune chance d'être remis en suspension individuellement.

Tableau III

Radioactivité artificielle β globale des aérosols à différents niveaux
(volume pompé de l'ordre de 60 m³. Résultats donnés en coups par minute,
sans tenir compte des rendements de collections ni de comptage).

Date et heure de fin de prélèvement		Activités aux niveaux			
		sol	50 m	75 m	100 m
21. 2. 62	11 h.	82,6	100,1	75,3	79,0
	17 h	91,5	96,1	93,4	81,7
	23 h	154,5	171,2	172,9	165,3
22. 2. 62	05 h	164,6	176,3	157,3	139,1
	11 h	77,2	74,3	83,7	68,3
	17 h	68,1	80,1	74,1	58,5
	23 h	92,3	93,7	96,6	63,4
23. 2. 62	05 h	263,8	219,9	224,3	172,9
	11 h	156,9	160,4	158,9	145,0

Fig. 9/II.4 - Radioactivité artificielle β globale des aérosols (G. Lambert, non publié).

En cas de sécheresse prolongée, un certain nombre de poussières sont effectivement soulevées par les tourbillons d'air, et entraînent avec elles les aérosols qui pourraient leur être agglutinés, mais ces poussières sont en général assez grosses et leurs temps de séjour dans l'atmosphère est, sauf très rare exception, trop court pour que leur concentration atteigne les valeurs qui sont nécessaires pour que la radioactivité artificielle de l'atmosphère en soit affectée.

II - 4/2.3.3 - Les prélèvements ont été repris aux niveaux 0 et 100 m pendant les mois de Mai, Juin et Juillet 1962, afin de vérifier les conclusions précédentes, en période de sécheresse, mais surtout, afin d'étudier systématiquement l'effet des conditions météorologiques locales, sur les mesures de radioactivité artificielle. A partir du 14 Mai, les filtres étaient chargés toutes les 3 heures, le volume d'air filtré étant ainsi ramené à 30 m³.

Nous avons considéré que l'état de stabilité ou de turbulence de l'atmosphère était bien représenté par la mesure de sa concentration en dépôt actif du radon, et nous avons enregistré en permanence cette concentration.

Les résultats confirment bien les conclusions que nous avons présentées au paragraphe précédent, les valeurs enregistrées au niveau du sol et à 100 m d'altitude restant constamment voisines, si l'on excepte une différence systématique de 10 %, attribuée comme précédemment à une légère différence de débit entre les pompes (cette fois-ci, les pompes utilisées ayant été permutées, c'est le niveau 100 m qui paraît systématiquement plus radioactif).

Au cours de ces trois mois un assez grand nombre d'inversions de température ont été enregistrées, entraînant des augmentations de la concentration atmosphérique du radon atteignant un facteur 30, ce qui indique une grande stabilité verticale de l'atmosphère. Aucune variation importante de la concentration des aérosols radioactifs artificiels ne paraît systématiquement corrélée à ces inversions de température. En particulier, leur concentration aux niveaux 0 et 100 m reste la même. Toutefois il semble qu'on observe souvent pendant la durée de l'inversion de température une légère diminution de ces concentrations, suivie d'une réaugmentation à la fin de l'inversion de température, mais cette observation souffre de nombreuses exceptions, et de semblables diminutions sont généralement observées en absence d'inversions de température, souvent la nuit mais parfois durant le jour.

Nous donnons ci-dessous dans le tableau IV, et figures 10 et 11, quelques exemples des variations enregistrées. Une remarque s'impose, lorsque l'on compare les tableaux III et IV (ou les figures 9, 10 et 11) : la dispersion des valeurs est plus grande dans le cas du tableau IV, bien que les explosions nucléaires soviétiques responsables de cette radioactivité soient sensiblement plus anciennes*. Ceci est dû à la faiblesse du volume d'air filtré, de l'ordre de 30 m³ qui se révèle ici insuffisant pour donner une idée valable de la radioactivité artificielle des aérosols, ce qui explique la plus grande importance des fluctuations aléatoires.

II - 4/2.3.4 - Outre la stabilité verticale de l'atmosphère, un autre facteur météorologique local doit être considéré : c'est l'action éventuelle des précipitations (pluie, neige, etc...) qui peuvent intervenir soit en nettoyant une partie de la basse atmosphère, soit en fixant les poussières sur le sol (rappelé ici pour mémoire, puisque nous avons montré au § II - 4/2.3.2 que ce phénomène n'intervient pas de façon importante), soit, au contraire, en contribuant à la contamination de la basse atmosphère, en accélérant la descente des aérosols depuis les couches moyennes ou supérieures de la troposphère.

Aucune corrélation de ce type n'a pu être mise en évidence, durant les mois de Mai, Juin, Juillet 1962, par comparaison des mesures de radioactivité artificielle effectuées toutes les 3 heures, et des données météorologiques enregistrées au même endroit (publications du S. C. R. G. R.) /A5/. La figure 12 donne un exemple de cette absence de corrélation : alors que la dernière pluie remonte au 28 Mai 1962, des niveaux très faibles de radioactivités sont enregistrés le 2 Juin de 17 à 20 heures et dans la nuit du 3 au 4 Juin. Des précipitations importantes se produisent par contre au début de la matinée du 10 Juin, sans apporter de variation à la radioactivité artificielle (alors qu'il s'agit des premières précipitations depuis 13 jours). Puis vers 20 heures (soit plus de 12 heures après la fin de la pluie) une très forte diminution de la radioactivité se produit.

Ainsi, bien que les précipitations constituent vraisemblablement un des principaux mécanismes de nettoyage de l'atmosphère, la chute de la pluie elle-même ne semble pas avoir une action sensible sur les aérosols radioactifs artificiels présents dans les plus basses couches de l'atmosphère. Ceci

* En effet, les explosions américaines de Avril-Mai 1962 (cf. Tableau I) n'ont pas contribué à la radioactivité artificielle de la basse atmosphérique, en Mai-Juin 1962, comme nous le montrerons plus loin.

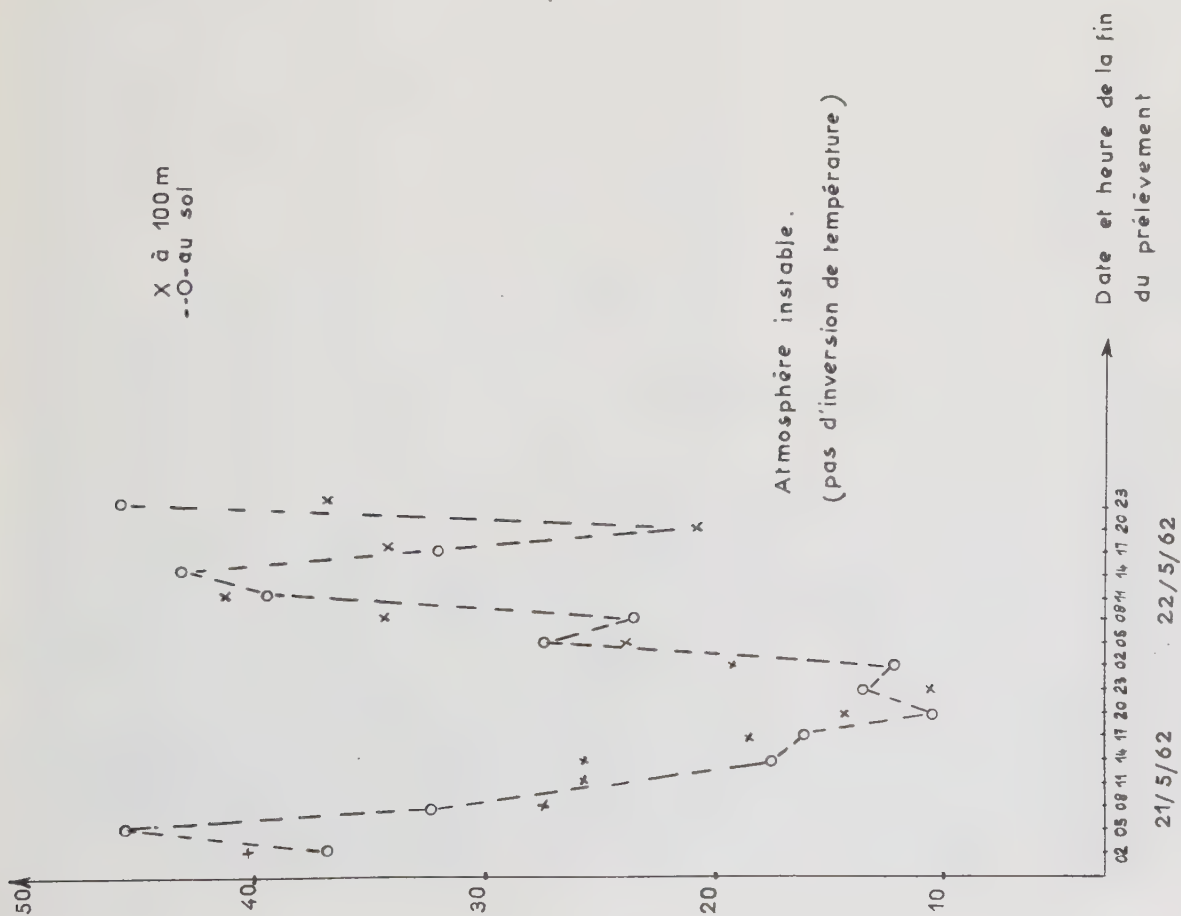


Fig. 10/II.4 - Radioactivité artificielle β globale des aérosols
(G. Lambert, non publié).

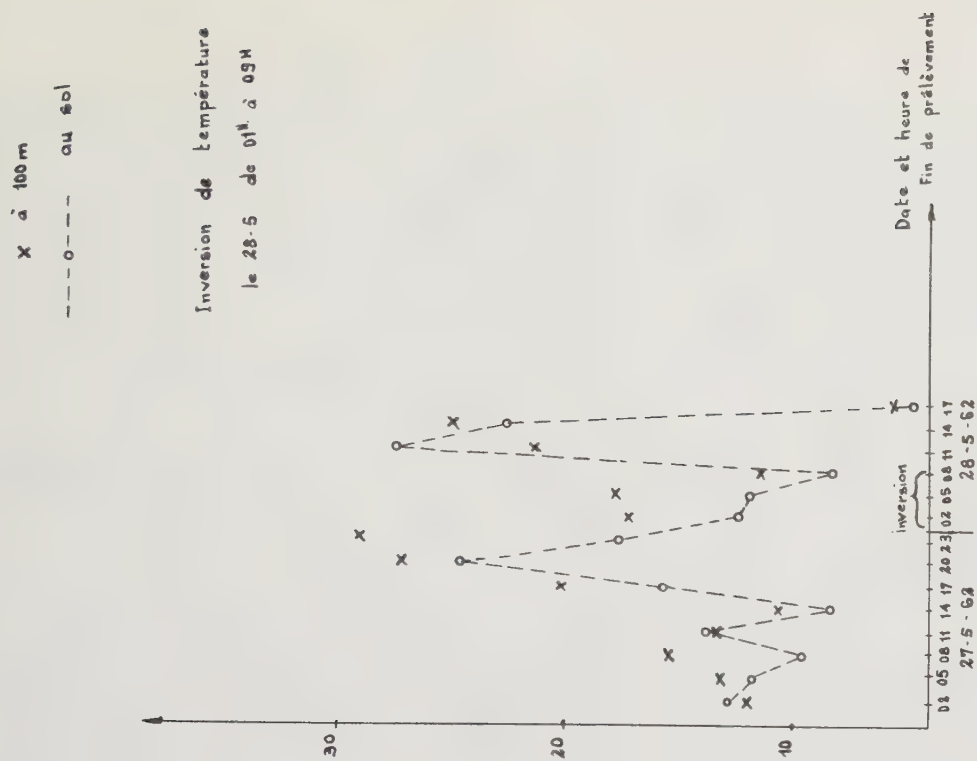


Fig. 11/II.4 - Radioactivité artificielle β globale des aérosols
(G. Lambert, non publié).

RADIOACTIVITÉ ARTIFICIELLE B GLOBALE DES AEROSOLS

(G. LAMBERT, non publié)

SACLAY, Niveau du sol

Juin 1962

{ * au niveau du sol
x à 100 mètres

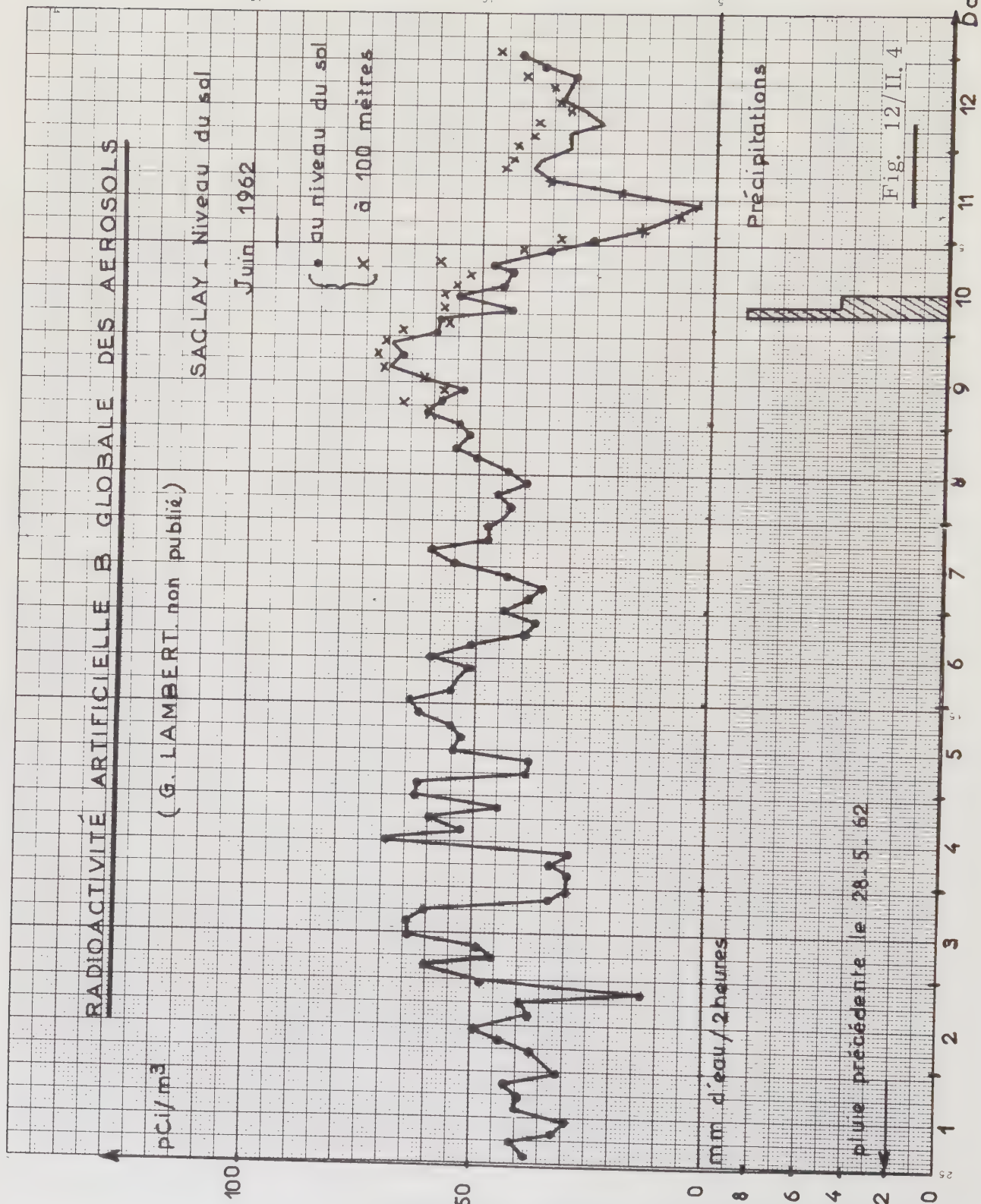


Fig. 12/II.4

Tableau IV
Radioactivité artificielle β globale des aérosols

Date et heure de la fin du prélèvement		Activités observées		Observations
		au sol	à 100 m	
21. 5. 62	02 h.	37,1	40,1	Pas d'inversion de températures
	05 h.	45,8	49,9	
	08 h.	32,2	27,7	
	11 h.	23,9	25,8	
	14 h.	17,5	25,7	
	17 h.	16,3	18,6	
	20 h.	10,6	14,4	
	23 h.	13,7	10,7	
22. 5. 62	02 h.	12,4	19,3	
	05 h.	27,6	24,0	
	08 h.	23,7	34,6	
	11 h.	39,6	41,3	
	14 h.	43,4	51,4	
	17 h.	32,2	34,3	
	20 h.	21,9	21,0	
	23 h.	46,0	37,0	
27. 5. 62	02 h.	12,9	12,0	Inversion de } températures de } 01 h. à 09 h.
	05 h.	11,9	13,1	
	08 h.	9,7	15,5	
	11 h.	13,9	13,4	
	14 h.	8,3	10,7	
	17 h.	15,8	20,2	
	20 h.	24,7	27,2	
	23 h.	17,8	29,0	
28. 5. 62	02 h.	12,4	17,2	
	05 h.	12,0	17,9	
	08 h.	8,2	11,6	
	11 h.	27,5	21,5	
	14 h.	22,8	25,0	
	17 h.	4,7	5,6	

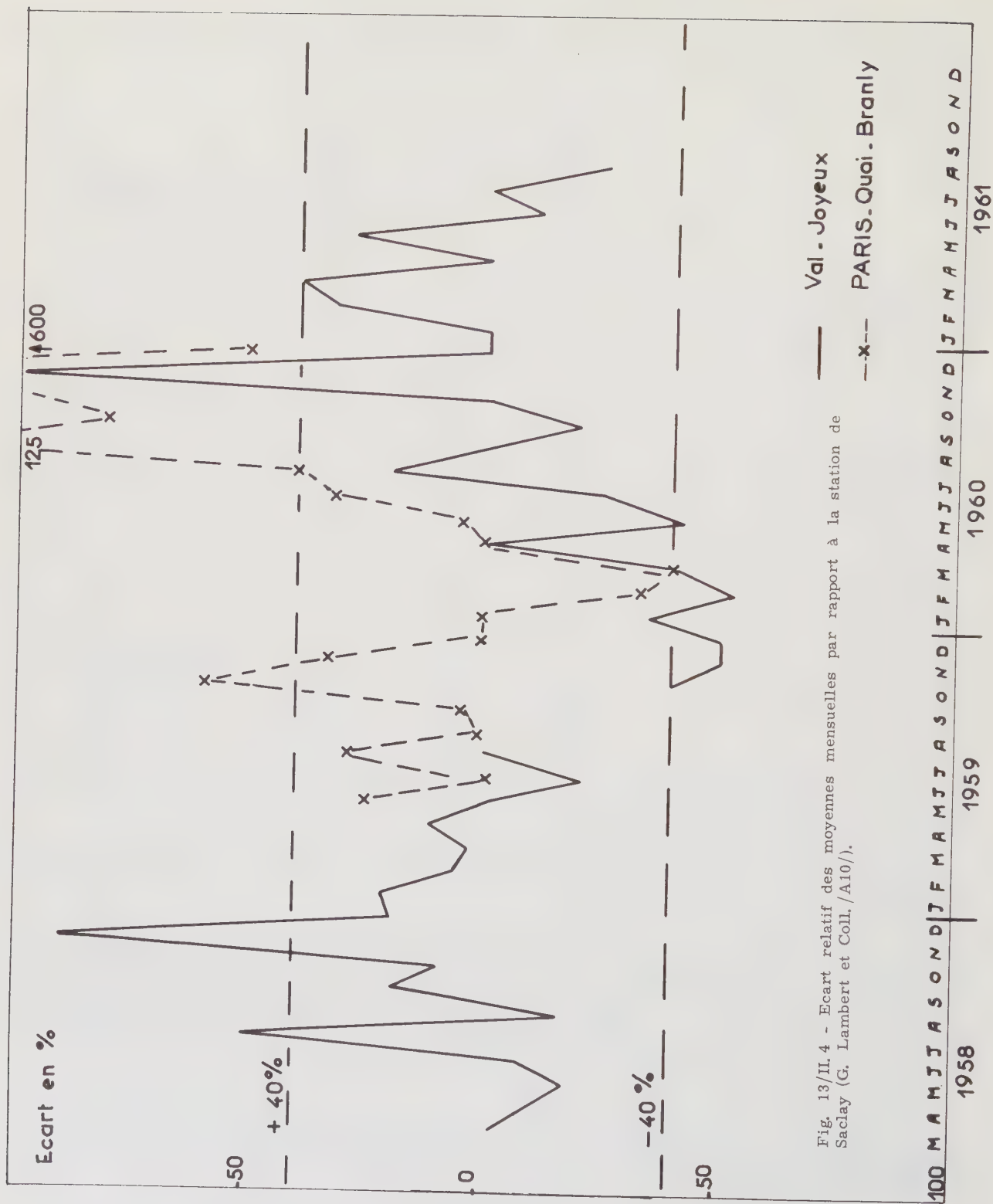
peut être attribué au fait que la granulométrie de ces aérosols est trop fine pour qu'ils puissent être capturés par une goutte de pluie tombante.

D'un autre côté il ne semble pas que la pluie élève sensiblement le niveau de cette radioactivité dans les heures qui suivent, car, ainsi que nous l'avons vu, les particules radioactives contenues dans la pluie restent bien fixées sur le sol.

II - 4/2.3.5 - Ainsi, les facteurs météorologiques locaux ne semblent pas influencer sensiblement sur les mesures de radioactivité artificielle des aérosols. Les mesures effectuées en un lieu donné seront donc représentatives de la région intéressée par la même masse d'air. Si l'on compare les moyennes mensuelles de radioactivité artificielle dans les stations de Saclay et du Val Joyeux, distantes de 15 km, pareillement éloignées de l'agglomération parisienne, et situées à des altitudes voisines, on peut constater, figure 13, que les résultats obtenus au val Joyeux diffèrent de ceux de Saclay de moins de 40 %, chiffre que nous avons adopté comme erreur de reproductibilité (pour des aérosols de même âge).

Ce n'est pas tout à fait exact en 1958, époque où des nuages radioactifs de formation récente pouvaient contaminer différemment les deux sites. Les écarts relatifs paraissent également importants en Novembre 1960, époque d'activité particulièrement faible, entraînant d'importantes erreurs statistiques de comptage.

Si l'on compare, par contre, aux résultats de Saclay, ceux de Paris-Quai Branly, on constate que les écarts sont souvent plus importants que dans le cas précédent et les valeurs généralement plus élevées : ceci fixe l'influence du fort empoussiérage de l'atmosphère parisienne.



Val-Joyeux
 PARIS-Quai-Branly

Fig. 13/II. 4 - Ecart relatif des moyennes mensuelles par rapport à la station de
 Saclay (G. Lambert et Coll. /A10/).

Les résultats obtenus sur la tour Eiffel, 300 m au dessus du Quai Branly, confirment d'autre part la relative homogénéité de la concentration des aérosols radioactifs artificiels dans les basses couches de l'atmosphère, contrairement à ce qui a été trouvé dans le cas du dépôt actif du radon /Tl/.

L'ensemble de ces résultats confirme donc bien la validité des mesures effectuées et de l'estimation des erreurs commises. Il nous sera donc possible de comparer les mesures effectuées dans nos diverses stations, et de souligner les aspects caractéristiques des résultats obtenus.

II - 4/3 - EVOLUTION GENERALE DE LA RADIOACTIVITE ARTIFICIELLE DES AEROSOLS EN FRANCE JUSQU'EN AOUT 1961

Etant donné la prépondérance des radionuclides de formation récente, dans la radioactivité artificielle globale des aérosols, on doit s'attendre à ce que l'évolution générale de cette activité recouvre exactement les cinq grandes périodes que nous avons distinguées dans l'histoire des explosions nucléaires : ceci n'est toutefois par entièrement exact.

II - 4/3.1 - Evolution au cours de la période "c" (1952 à Novembre 1958).

Nos mesures systématiques ont seulement commencé à Saclay en 1957. On peut voir sur la figure 14 que de nombreuses irrégularités se sont produites, mais ne correspondent nullement aux périodes de forte injection. En particulier, les pics de Avril à Juin 1957 et Avril 1958 ne sont pas directement corrélés à des séries d'explosions particulièrement importantes, mais nettement décalés.

Les seules corrélations vraiment significatives, durant toute la période ont exigé la détermination de l'origine des différents composants des nuages radioactifs. En particulier la comparaison des concentrations atmosphériques en certains produits de fission (tels que le strontium 90 et le césium 137), et des produits d'activation comme les tungstènes 181 et 185, et le rhodium 102 introduits artificiellement dans certaines séries d'explosions américaines, a permis l'identification des débris radioactifs en présence. La détermination de leur âge a également été faite par comparaison des activités de deux isotopes de périodes nettement différentes comme les strontium 89 et 90, et les cérium 141 et 144.

Les conclusions de ces études ont permis de fixer un ordre de grandeur du temps de résidence dans la stratosphère, suivant les lieux et périodes d'injection, et ont confirmé que les pics de radioactivité observés avaient bien pour origine des propriétés permanentes de la circulation atmosphérique (Gustafson Novembre 1962 /G10/).

II - 4/3.2 - Evolution au cours de l'année 1959.

A partir de Décembre 1958, un moratoire étant intervenu entre l'U. R. S. S., les Etats-Unis d'Amérique et la Grande-Bretagne, les explosions nucléaires cessent. Contrairement à toute attente, la radioactivité des aérosols ne diminue absolument pas. On constate au contraire, sur la figure 14, qu'elle ne cesse d'augmenter jusqu'en Mai 1959, mois où est obtenue la plus forte moyenne jamais mesurée à Saclay jusqu'alors.

Il était légitime à cette période de considérer que la plus grande part des aérosols radioactifs artificiels provenait des dernières séries d'explosions, très importantes, de Septembre-Octobre-Novembre 1958 (particulièrement de ce dernier mois). Si l'on applique alors la loi générale de décroissance d'un mélange de produits de fission, que nous avons indiquée au chapitre II - 1, nous trouvons que la concentration des aérosols en Mai 1959 était 7 fois plus importante que ne l'indique leur radioactivité, soit environ 14 fois la valeur de Décembre 1958.

Une telle augmentation, six mois après l'arrêt des explosions, implique l'existence, en dehors des basses couches de l'atmosphère, d'un véritable réservoir de nuclides radioactifs artificiels qui se situe dans la stratosphère, comme nous le verrons dans la Troisième Partie. Toutefois, l'existence de ce réservoir ne suffit pas à expliquer cette forte montée, suivie d'une baisse encore plus importante, puisqu'en quatre mois (de Juin à Octobre 1959) on atteint la valeur mensuelle moyenne de 0,1 pCi/m³, soit 40 fois moins qu'en Mai. Nous avons indiqué dans la Première Partie, que les transferts entre stratosphère et troposphère paraissaient être des phénomènes assez lents et limités. Il faut donc supposer ici qu'un véritable phénomène de vidage a pu se produire néanmoins et a pris fin par épuisement du réservoir ou nettoyage de la troposphère et arrêt de sa contamination. Divers auteurs ont cherché à expliquer ce phénomène : une possibilité d'explication étant le stockage dans la basse stratosphère polaire des débris des explosions soviétiques de l'hiver 1958, suivi d'une injection dans la troposphère au printemps, par suite de l'élévation saisonnière de la tropopause (Block - Bleichrodt).

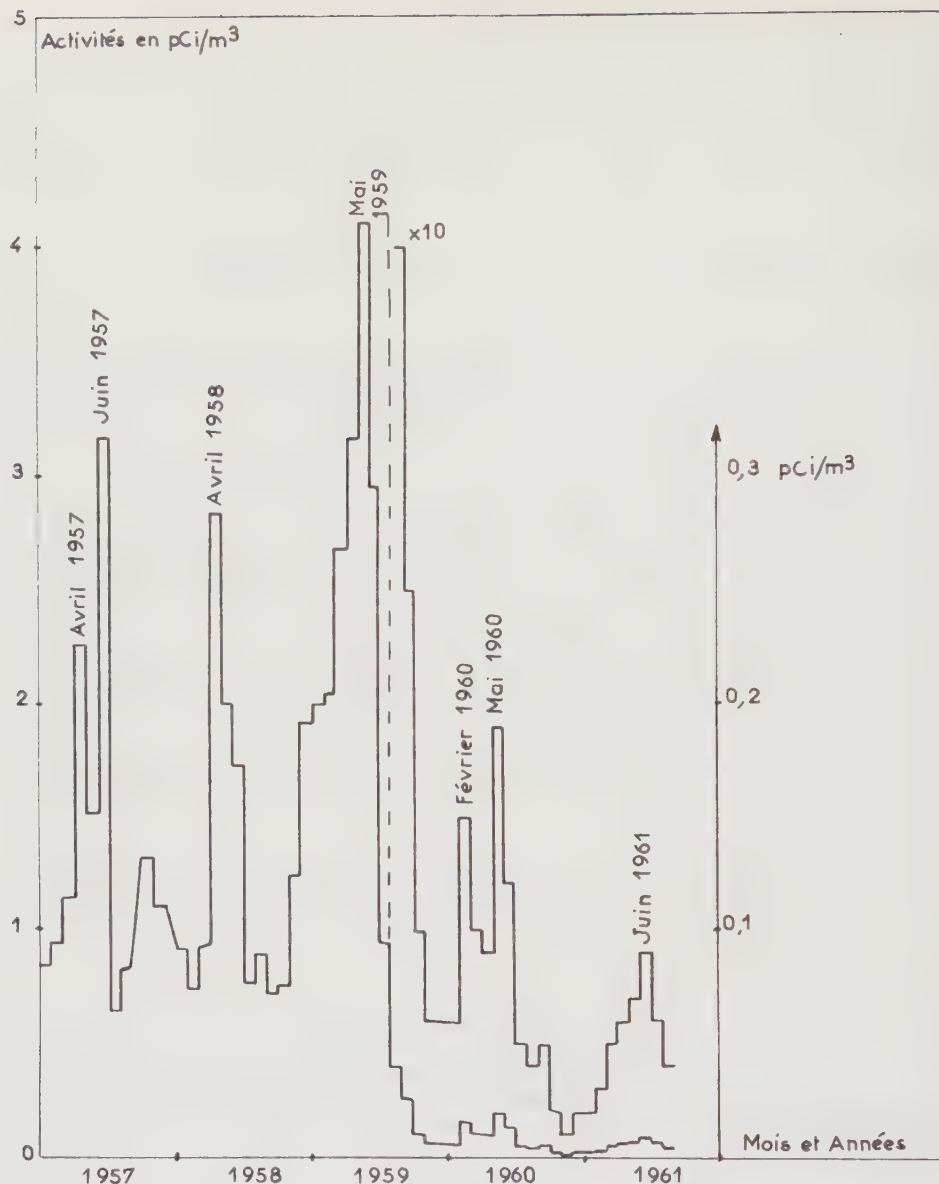


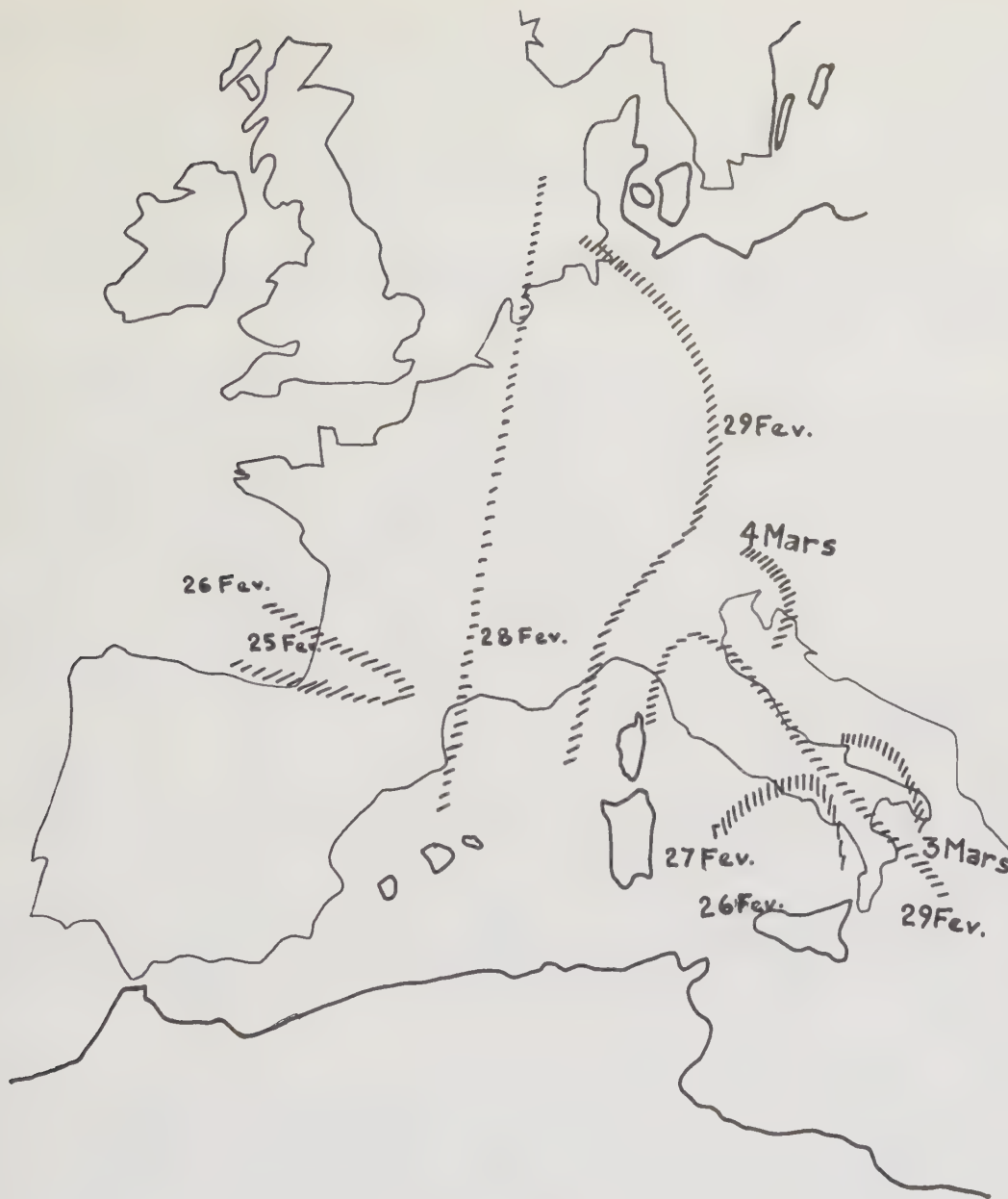
Fig. 14/II.4 - Evolution de la radioactivité β globale des aérosols. Station de Saclay (48°43' Nord) (G. Lambert et Coll. /A10/).

Nous mêmes, nous avons formulé l'hypothèse d'une possible corrélation avec les orages cosmiques, exceptionnellement importants au printemps 1959, mais sans pouvoir en apporter un commencement de preuve.

Quelle que soit l'explication de ce pic particulièrement important de radioactivité, les mois suivants en sont fortement influencés et peuvent être caractérisés par le lent nettoyage de la troposphère avec un temps de demi nettoyage voisin du mois.

II - 4/3.3 - Evolution en Janvier - Février - Mars 1960.

En Janvier 1960, la rapide diminution de radioactivité se stabilise, au niveau de 0,1 pCi/m³, niveau le plus bas atteint depuis 1956 au moins. Cette situation va être modifiée par la première explosion française survenue à Reggane (27° Latitude Nord - 0° Longitude) le 13 Février 1960. En dépit de sa puissance modeste, cette explosion survenant à une époque où la radioactivité artificielle de l'atmosphère est très faible, va donner naissance à des nuages de débris radioactifs aisément



Carte n° 1 - Fig. 15/II. 4.

détectables et faciles à distinguer des produits de Novembre 1958, par leur spectre γ , ou plus simplement leur rapide décroissance /L6/.

Si l'on examine les résultats publiés par différentes stations européennes d'enregistrement de la radioactivité artificielle de l'atmosphère, on peut mettre en évidence la progression d'un de ces nuages à la fin du mois de Février 1960.

Si l'on s'intéresse à la première augmentation d'activité significative (valeur qui peut être différente pour chaque station), on constate sur la carte n° 1 (figure 15), que l'Europe Occidentale peut être divisée en plusieurs zones, suivant la date de cette augmentation. Tout se passe comme si un nuage circulant d'Ouest en Est, à faible altitude, avait débouché de l'Océan Atlantique en deux fractions.

Une première fraction aborde les côtes françaises (par Biarritz) dès le 25 Février, progresse vers l'Est (Toulouse est atteint le 26), se répand sur la moitié Ouest de la France entre le 27 et le 28, et atteint le Sud-Ouest de l'Allemagne et le Nord-Ouest de l'Italie le 29 Février.

Une deuxième fraction traversant la Méditerranée également d'Ouest en Est, atteint Palerme le 26 Février, Naples le 27, remonte l'Italie du Sud au Nord très lentement pour atteindre Bologne le 29 Février, Gênes le 2 Mars et Pallanza une deuxième fois le 3 Mars.

Passé, cette date on ne peut plus distinguer les deux fractions qui se sont rejointes pour se disperser aussitôt. Bari est atteint le 3 Mars, et Trieste seulement le 4 Mars. Berlin et Schleswig semblent avoir été laissés de côté, et les augmentations d'activité constatées les 1er et 2 Mars y sont très faibles.

On peut penser que les nuages ont diffusé, ensuite, et provoqué les accroissements de la radioactivité des aérosols en des points variés et à des dates différentes. On note toutefois un accroissement dans dix stations le 13 Mars, et d'une façon générale au mois de Mars, une activité double de celle des mois précédents.

Les villes les plus "touchées" sont soit des villes côtières (Biarritz, Bordeaux, Anvers, Essen, Palerme) soit des sites montagnards (Clermond-Ferrand, Munich, Pallanza) ce qui laisse à penser que des échanges verticaux plus importants se produisent à ces endroits, et favorisent l'arrivée au sol des aérosols constituant un nuage à altitude modérée (certainement troposphérique). De plus, la vitesse de propagation, inférieure à 600 km par jour, soit 25 km/h, est bien celle d'une masse d'air troposphérique. On pourra utilement comparer, d'ailleurs à ce sujet le trajet des particules actives, et la direction générale des vents aux dates indiquées. La carte n° 2, figure 16, tracée d'après les bulletins quotidiens de renseignements de la Météorologie Nationale, montre que le nuage actif pourrait avoir précédé de quelques heures un front froid se déplaçant Sud Ouest - Nord Est, puis Est et disparaissant au Nord sans avoir atteint Berlin par suite de la rencontre d'un front chaud, perturbant sa progression vers l'Est. La comparaison des cartes 1 et 2 est du reste très éloquente.

Ce premier passage du nuage de Reggane sera suivi de quelques légères augmentations passagères, dans diverses stations, courant Mars 1960. Mais à la fin Mars, les études de décroissance et l'étude spectrographique γ confirment que l'apport de radioactivité en provenance de Reggane est devenu tout à fait négligeable.

L'existence de cette explosion isolée nous a néanmoins permis d'étudier le déplacement troposphérique d'un nuage de débris radioactifs, à une vitesse relativement faible de 500 à 600 km par jour, mais à concentration relativement constante, durant plusieurs jours, ou plus exactement tant que les conditions météorologiques n'entraînent pas de diffusions trop importantes.

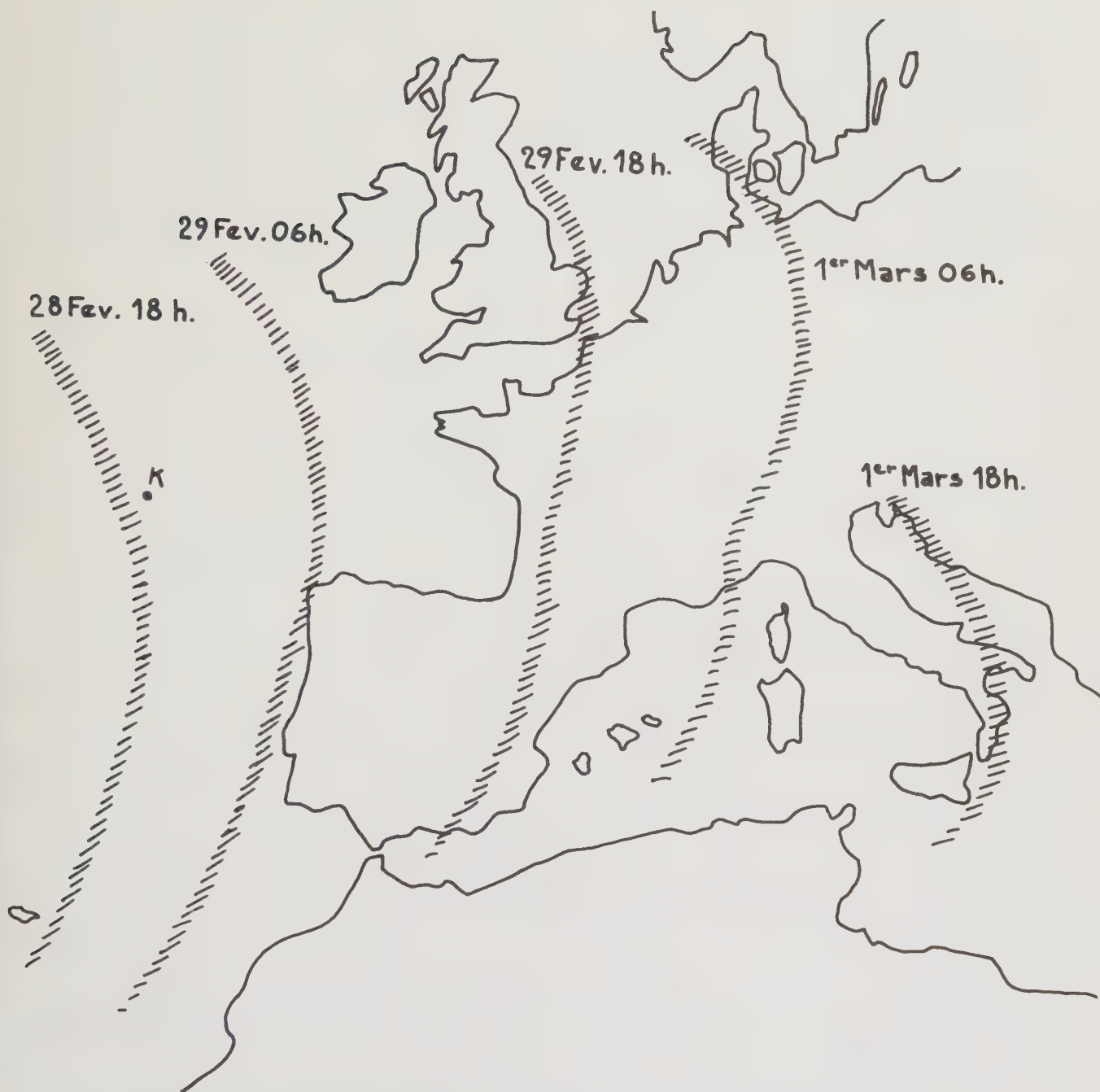
Notons enfin que dans ce cas, le décalage entre la formation et la détection lointaine du nuage radioactif n'a pas dépassé quinze jours, contrairement à ce qui se produisait couramment en 1957-1958 (sans parler du pic de Mai 1959) ce qui tendrait à prouver que les corrélations rapides entre les explosions nucléaires et la détection des nuages formés est le propre des retombées troposphériques (cas de l'explosion de Reggane à puissance limitée).

II - 4/3.4 - Evolution de Avril 1960 à Août 1961.

A partir de Avril 1960, et jusqu'à la fin de la période "d" soit fin Août 1961, les explosions nucléaires seront de puissance trop faible pour que leurs débris atteignent la France avec des concentrations non négligeables. Dans l'ensemble, les radionuclides artificiels mesurés en France proviendront tous des explosions de fin 1958, c'est-à-dire que leur âge sera relativement bien connu et que la décroissance radioactive étant lente, pour des produits âgés de près de deux ans, la mesure de la radioactivité pourra être confondue, en première approximation, avec la concentration des aérosols.

Dans ces conditions, les deux maxima de concentrations observables sur la figure 14 en Mai 1960 et en Juin 1961 doivent avoir une signification physique profonde. On peut d'ailleurs constater sur la figure 17, qui indique l'évolution de la radioactivité dans diverses stations Françaises, que ces maxima de printemps se retrouvent systématiquement dans toutes ces stations. La présence dans l'atmosphère de débris radioactifs, un à deux ans après leur formation, étant expliquée par l'existence d'un réservoir stratosphérique, il faudra expliquer ces maxima, par un effet saisonnier affectant les mécanismes de transfert des aérosols depuis leur réservoir jusque dans la troposphère.

Nous examinerons ultérieurement ce problème.



Carte n° 2 - Fig. 16/II, 4.

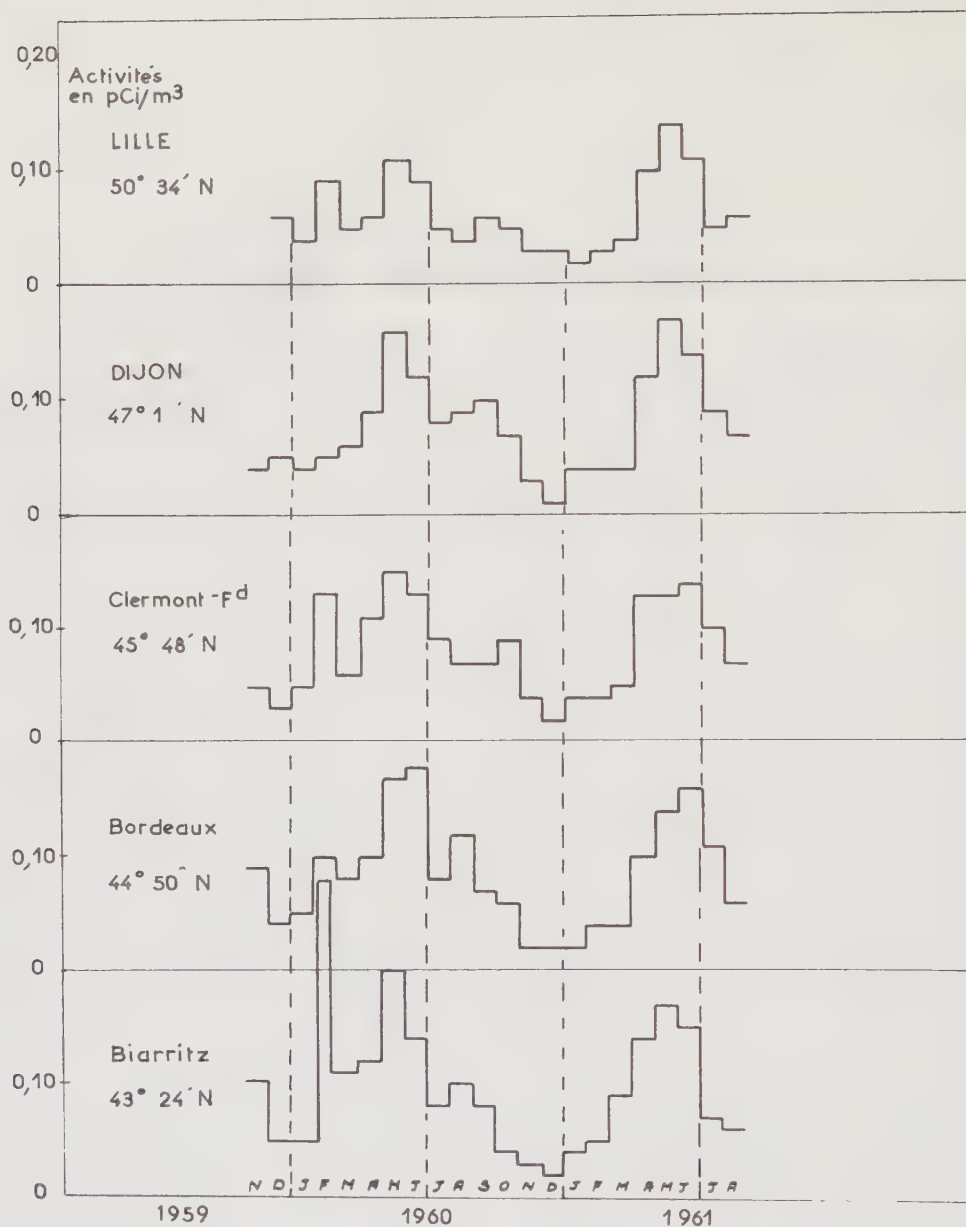


Fig. 17/II.4 - Evolution de la radioactivité β globale des aérosols (G. Lambert et Coll./A10/).

II - 4/4 - EVOLUTION DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS DANS LE MONDE DE 1959 A AOUT 1961

II - 4/4.1 - La France ne représente qu'une faible fraction de la superficie du globe (environ le millième). Il peut donc paraître illusoire d'analyser finement les phénomènes atmosphériques au dessus de la France seule, bien que, comme nous l'avons signalé dans le Première Partie, la faible hauteur de l'atmosphère et la prédominance de la circulation zonale, font que le paramètre géographique fondamental, pour l'atmosphère, reste la latitude (ce qui fait que la France représente plus du vingtième de la base géographique de ces études).

Un très grand nombre de mesures de radioactivité totale des aérosols ont été faites et publiées dans le monde entier, mais la faible reproductibilité de ces mesures, entre dispositifs de prélèvement et de mesures différents, empêche d'en tirer le profit maximum. Il vaut mieux alors analyser les mesures fournies par chaque réseau homogène de stations et comparer les conclusions.

II - 4/4.2 - Dans cet esprit, le réseau le plus intéressant à considérer est celui du Naval Research Laboratory, dirigé par L. B. Lockhart, et qui couvre la zone du 80^e méridien Ouest, entre 53° Sud et 76° Nord, dont les mesures ont commencé en 1956 et font l'objet de nombreux rapports internes de ce laboratoire et publications scientifiques. L'analyse de ces résultats montre bien la variation systématique de radioactivité en fonction de la latitude, et plus particulièrement le comportement fondamentalement différent des deux hémisphères : en particulier l'hémisphère Sud n'a pas été concerné par l'augmentation printanière observée en Mars-Avril-Mai 1959 dans l'hémisphère Nord, comme le montre la figure 18 extraite du rapport N. R. L. 5 528 /L19/. Si l'on examine chaque station individuellement, on constate (Lockhart /L18/ /L19/) que dans l'hémisphère Nord le maximum du printemps 1959 se produit de plus en plus tard au fur et à mesure que l'on se déplace vers le Nord : il se produit en Février entre 9 et 18° Nord, et en Avril à partir de 25° Nord. Nous avons également noté en France un semblable déplacement, le maximum se produisant en Avril à Bagnères de Bigorre (43° Nord) et en Mai à Saclay et au Val Joyeux (49° Nord). Dans l'hémisphère Sud, un maximum fort peu prononcé se produit en Février 1959 à 50° Sud et en Mars 1959 aux latitudes Sud Moyennes, tandis qu'il n'apparaît pas aux latitudes Sud tropicales.

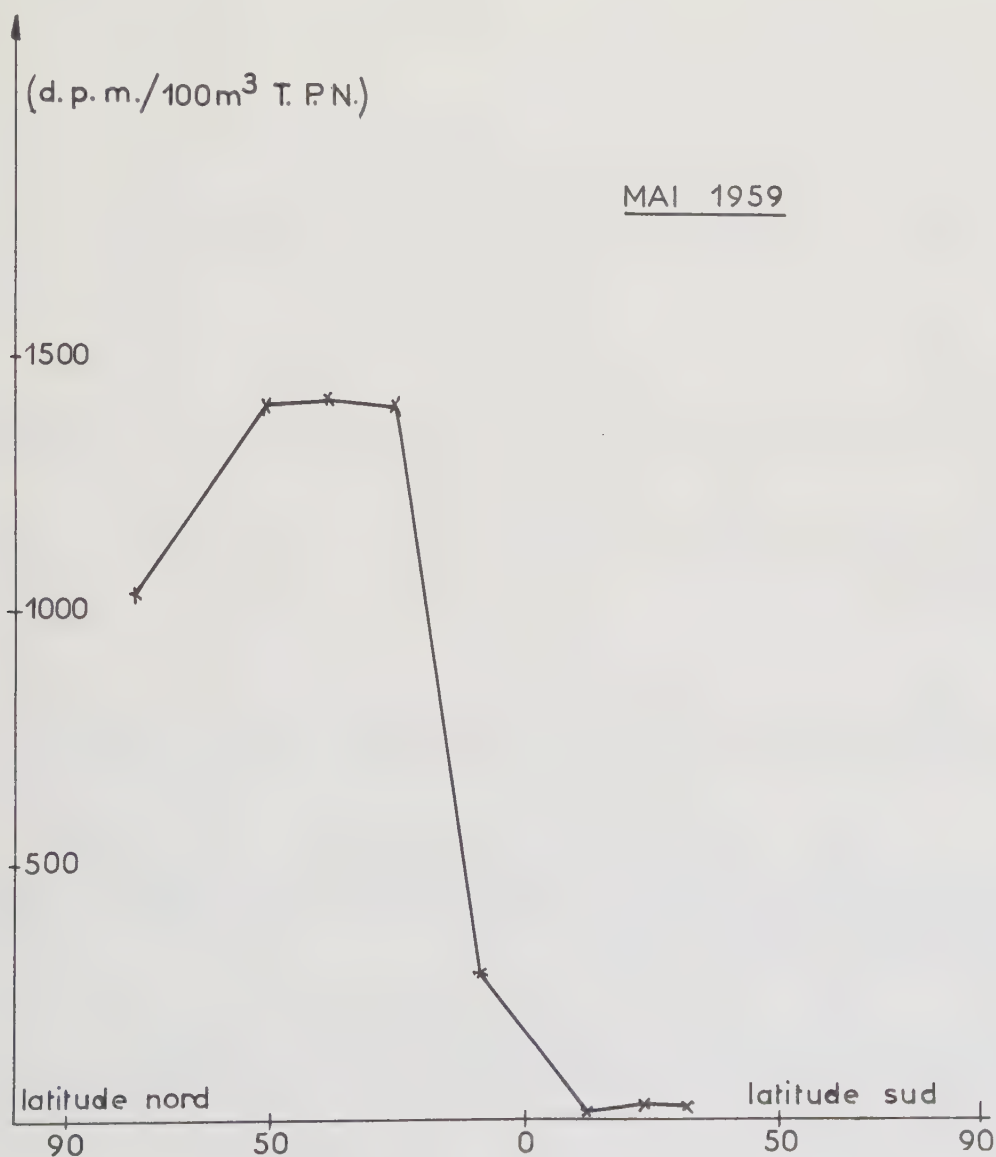


Fig. 18/II.4 - Activité mensuelle moyenne β totale (D'après Lockhart et Coll. /L19/).

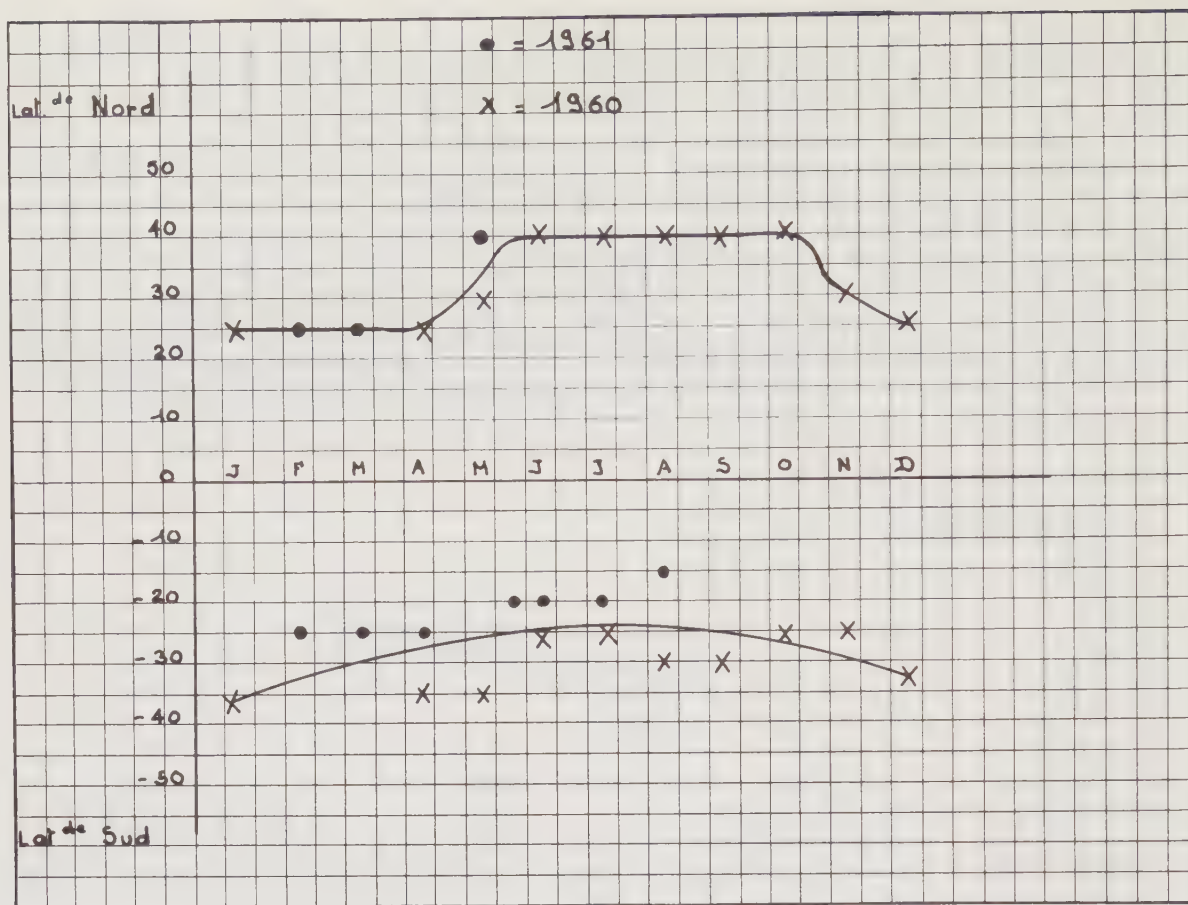


Fig. 19/II.4 - Latitude du maximum de radioactivité. Valeurs numériques extraites des publications, LB Lockhart et Coll. /L20/.

Ces tendances sont largement confirmées par les résultats obtenus par Lockhart en 1960 et 1961 (voir figure 19) /L20/, en accord avec nos propres résultats en France, tels qu'ils sont indiqués figures 17 et 14 et à Dakar, où le maximum saisonnier, assez peu marqué, se produit en Mars 1961.

II - 4/4.3 - A partir de 1960, nous commençons à disposer d'un réseau de stations en dehors de la France, constitué par les frégates météorologiques, les stations des îles Kerguelen et de Terre Adélie. De plus, une installation de prélèvement des aérosols sera en fonctionnement à chaque voyage des expéditions polaires françaises à partir d'Octobre 1959 : les filtres utilisés sont adressés à chaque escale au C. E. N. Saclay, où ils sont mesurés.

La première coupe en fonction de la latitude, effectuée ainsi à bord du Norsel, en Octobre-Novembre 1959, a confirmé que l'hémisphère Sud était alors sensiblement moins contaminé que l'hémisphère Nord. La comparaison des mesures effectuées à bord du Norsel et dans les stations fixes les plus voisines, a montré que les résultats étaient tout à fait comparables /A7/.

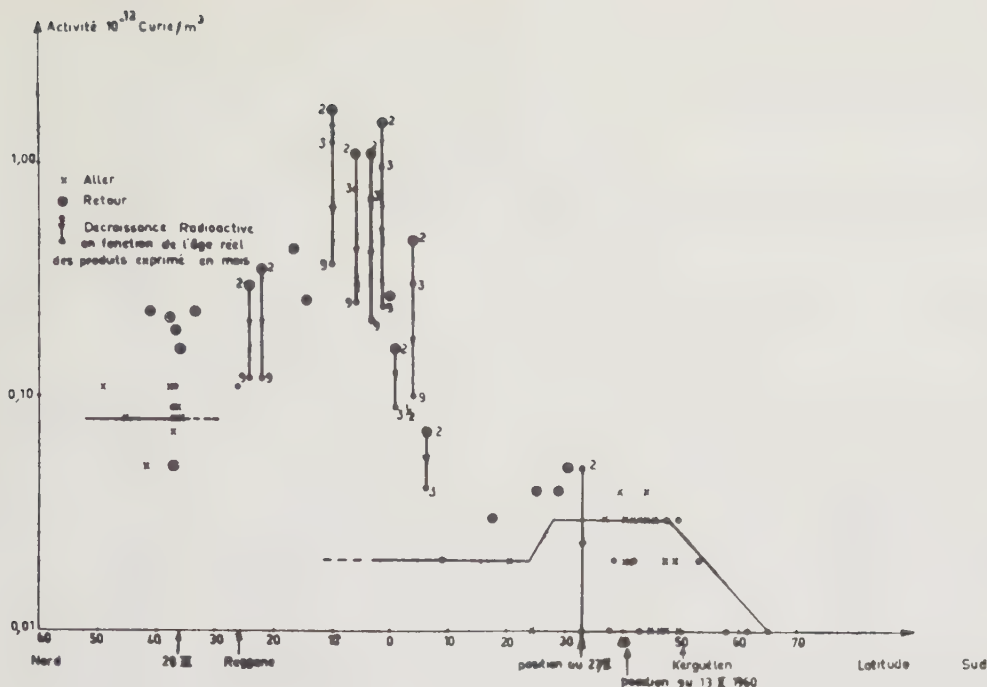


Fig. 20/II.4 - Radioactivité β des aérosols prélevés à bord du "Norsel".

Lors de son voyage de retour, en Février-Mars 1960, le Norsel se trouvait au Sud de l'Australie, à 45° de latitude Sud, au moment de l'explosion de Reggane, le 13 Février. Le 27 Février, vers 35° de latitude Sud, le Norsel rencontre un nuage d'aérosols radioactifs dont l'âge laisse supposer qu'il s'agissait bien de débris de Reggane. Ce fait reste exceptionnel et les premiers aérosols de formation récente rencontrés de façon systématique, le seront à partir de 5° Sud, environ, et surtout après la traversée de l'équateur. La figure 20 précise ces résultats. On peut constater que le maximum de concentration sera observé vers 12° Nord, soit à mi-chemin entre l'équateur et la latitude de l'explosion. Tout semble donc se passer comme si les débris de cette explosion avaient dérivé vers le Sud, à des vitesses de plus en plus petites, au fur et à mesure de leur progression, et n'avaient pas franchi l'équateur. Ce dernier fait est confirmé par les mesures que nous avons effectuées aux Kerguelen et en Terre Adélie, ainsi que par les mesures effectuées dans l'hémisphère Sud par d'autres observateurs (Lockhart). Or, nous avons indiqué que la majeure partie des aérosols radioactifs artificiels formés à Reggane étaient demeurés dans la troposphère. Nous avons ainsi formulé dès 1960 l'hypothèse de l'existence d'une barrière équatoriale entre les troposphères des hémisphères Nord et Sud, barrière qui pourrait laisser passer exceptionnellement des fractions de masses d'air, limitées, mais resterait globalement étanche /A7/.

II - 4/4.4 - A partir de 1961, trois stations de prélèvements des aérosols, situées en Afrique, sont venues compléter notre réseau. Elles ont mesuré des augmentations sensibles de radioactivité en Janvier 1961 puis Avril-Mai 1961, à la suite des explosions françaises de Reggane de Décembre 1960 et Avril 1961. Aucune trace de ces débris n'a été décelée dans l'hémisphère Sud, pas plus du reste qu'en France. Toutefois, ces augmentations passagères rendent difficiles la comparaison des mesures entre stations situées à diverses latitudes.

II - 4/4.5 - Nous avons vu que pendant les années 1959-1960-1961 l'hémisphère Sud était resté essentiellement soumis à l'arrivée de débris radioactifs en provenance du réservoir stratosphérique, et formés au cours des explosions de la fin 1958. Durant toute cette période, l'ensemble des mesures effectuées, tant par nous-mêmes que par les autres observateurs a montré que la radioactivité des aérosols y restait grossièrement constante (voir figures 21 et 22). L'effet saisonnier, s'il existe, serait d'amplitude très faible (à peine discernable) et consisterait en un minimum d'activité durant les mois de Juin, Juillet et Août. L'effet observé, toutefois, ne sort pas des limites des erreurs possibles.

KERGUELEN

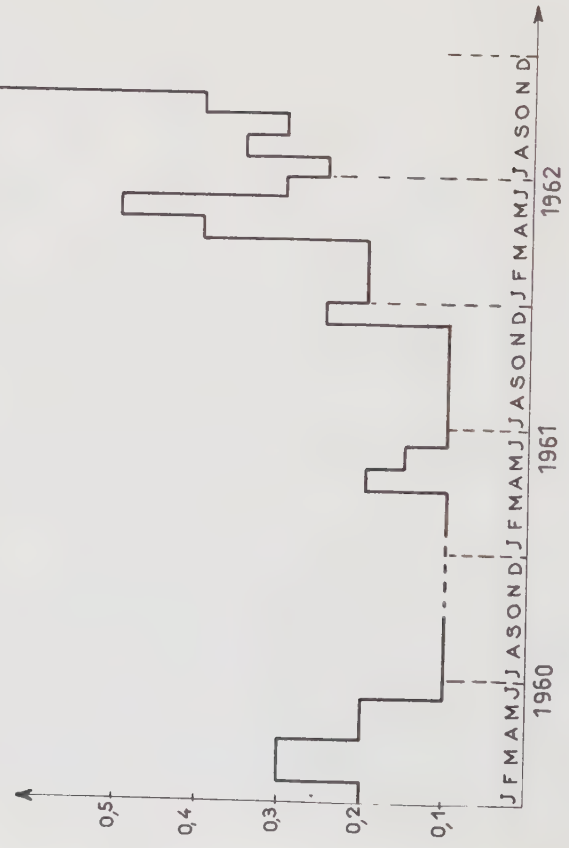


Fig. 21/II.4 - Radioactivité β globale des aérosols
(G. Lambert et Coll. /A10/A11/).

TERRE ADELIE

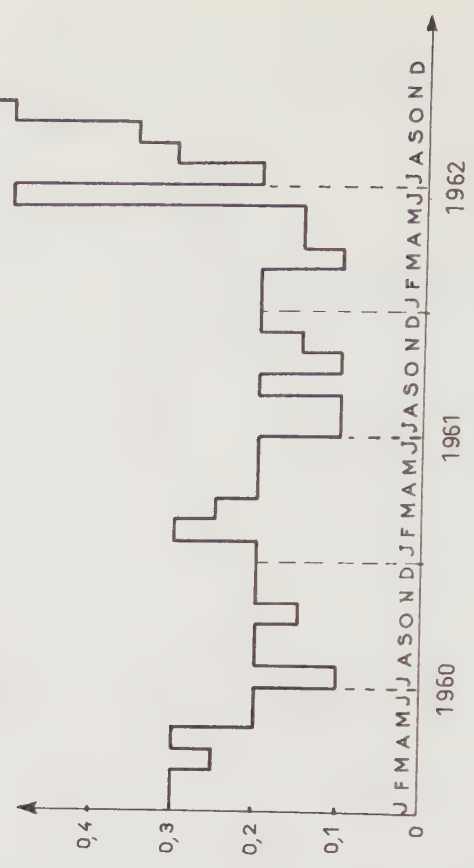


Fig. 22/II.4 - Radioactivité β globale des aérosols
(G. Lambert et Coll. /A10/A11/).

Une idée plus nette de la structure des deux hémisphères est donnée par les résultats obtenus au cours des voyages du Norsel, en Octobre-Novembre 1960, et Février-Mars 1961 /A8/. La technique des prélèvements à bord d'un bateau effectuant une longue traversée Nord-Sud avait été inaugurée par Piccioto en 1958 /P5/. Les inconvénients de cette technique résident dans la relative lenteur du déplacement du bateau, ce qui fait que la coupe méridienne ainsi obtenue ne représente pas la répartition des aérosols à un instant bien déterminé.

Par contre, le grand nombre de points de prélèvements permet une analyse plus fine des phénomènes qu'un réseau de stations toujours trop espacées. De plus, la comparaison des profils obtenus au cours de traversées successives permet de distinguer l'évolution au cours du temps, de la répartition trouvée.

La radioactivité des prélèvements effectués au cours de ces voyages était si faible dans certains cas que nous avons dû contrôler, notamment par spectrographie γ , que, dans son ensemble, la radioactivité des filtres était bien imputable à des produits de fission.

Si l'on porte sur un graphique l'ensemble des résultats des mesures β , en fonction de la latitude du prélèvement (figure 23), nous constatons que l'ensemble de ces points est délimité par deux courbes grossièrement parallèles (lieux des maxima et des minima) entre lesquelles les points se répartissent apparemment au hasard. Ces courbes présentent deux maxima arrondis, entre 0 et 30° Nord d'une part, 15 et 30° Sud d'autre part, et un minimum très aigu vers 5° Sud. De plus les courbes semblent devenir horizontales au Sud du 45° parallèle Sud. La profonde brèche qui interrompt ces courbes entre 0 et 10° Sud est certainement l'élément le plus caractéristique du graphique. Notons de plus l'importante dispersion des points de mesure relatifs à une latitude donnée (un facteur 5, pouvant atteindre 10 dans la région du maximum Nord).

Ce graphique indique l'allure moyenne de la répartition annuelle. Il correspond assez bien à ce que nous connaissons des retombées radioactives pendant la durée du voyage du Norsel, indiquées en bas de la figure 23 (voir Quatrième Partie). La faiblesse simultanée des retombées radioactives et de la radioactivité des aérosols dans la zone du minimum (0 à 10° Sud) est d'autant plus caractéristique que la pluviométrie dans ces régions est importante et que l'on s'attendrait à de fortes retombées. Ce dernier fait, nous montre que la faible concentration en aérosols radioactifs artificiels entre 0 et 10° Sud ne peut être imputée à un lessivage local de l'atmosphère particulièrement important, car les retombées radioactives y seraient d'un ordre de grandeur au moins égal à celui des régions voisines.

Si l'on examine séparément les résultats relatifs aux trajets "aller" et "retour" du Norsel, différentes observations peuvent être effectuées (figure 24).

1/ La dispersion des résultats relatifs à une latitude donnée est deux fois plus faible que dans le cas précédent : elle reste toutefois plus importante, lorsque les concentrations sont plus élevées, fait remarquable sur lequel nous aurons à revenir.

2/ Une modification importante de la répartition géographique des aérosols se produit entre l'Automne et le Printemps boréaux : déplacement du maximum vers le Sud d'environ 10 degrés, et augmentation "printannière" entre 20 et 40° Nord.

II - 4/4.6 - Nous pouvons donc résumer les résultats obtenus jusqu'ici de la manière suivante :

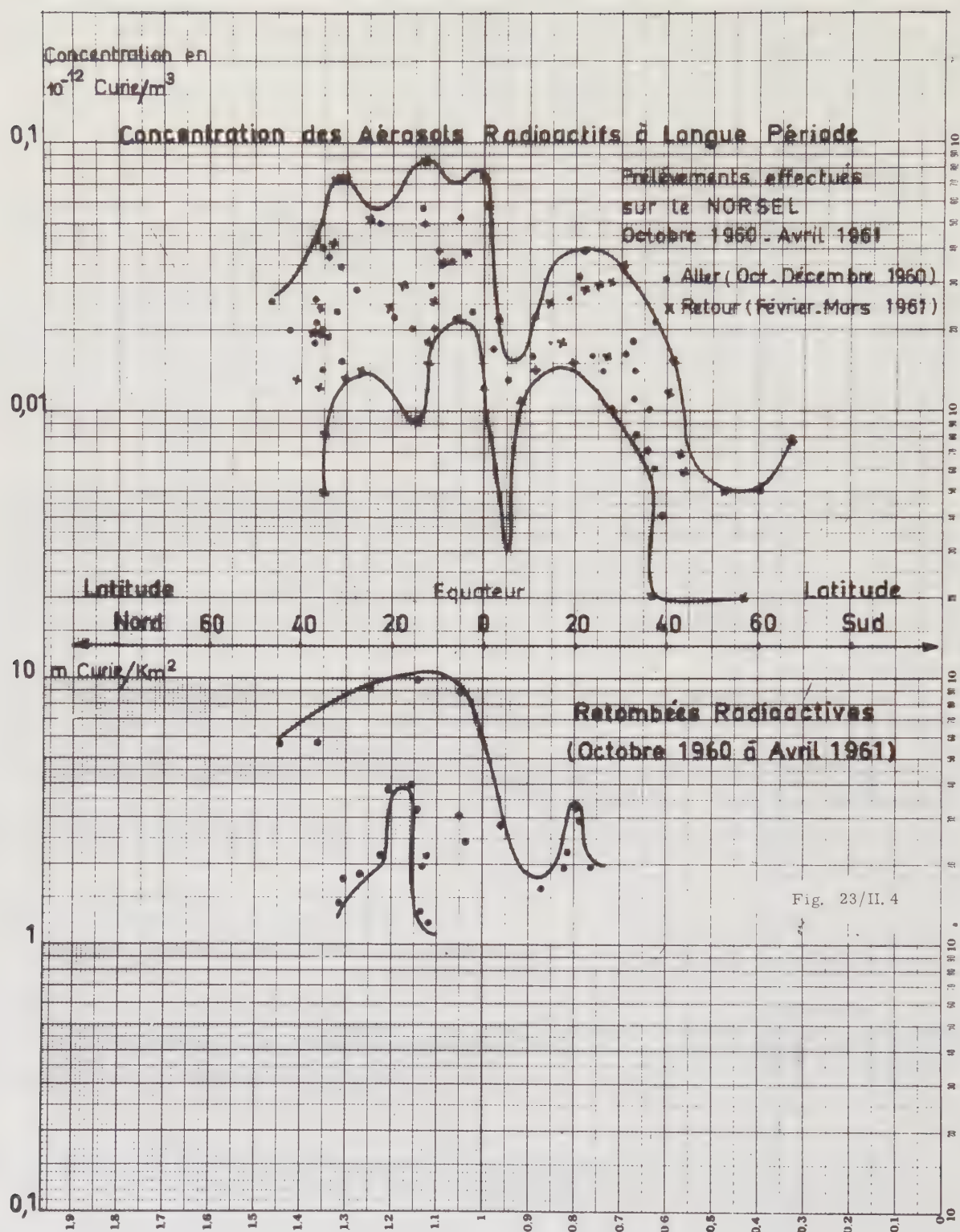
1°) La répartition méridienne des aérosols radioactifs artificiels exclut toute idée de diffusion ou de transport à basse altitude d'un hémisphère dans l'autre.

2°) Les maxima de concentration observés à certaines latitudes sont soumis à des fluctuations saisonnières : le maximum de printemps observé aux latitudes moyennes dans l'hémisphère Nord coïncide avec la saison où cette zone possède justement la concentration maximale.

3°) L'hémisphère Sud présente au contraire une concentration d'aérosols extrêmement faible, stable et relativement uniforme.

II - 4/5 - EVOLUTION DE LA CONCENTRATION EN AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS, AU COURS DE LA PERIODE "e" (SEPTEMBRE 1961 - FEVRIER 1962)

II - 4/5.1 - A partir du 1er Septembre 1961, la reprise des essais nucléaires sur une échelle encore jamais atteinte bouleverse complètement l'évolution de la radioactivité des aérosols, alors que le niveau était un des plus bas atteints depuis 10 ans. Les débris provenant des explosions anciennes, antérieures à Novembre 1958, et qui atteignaient lentement la troposphère, vont être complètement dissimulés par les produits plus jeunes.



Concentration des Aérosols Radioactifs à longue Période

Concentration en 10^{-12} Curie/m³

Prélèvements effectués sur le NORSEL

Octobre 1960 - Avril 1961

(G. Lambert et Coll./A8/)

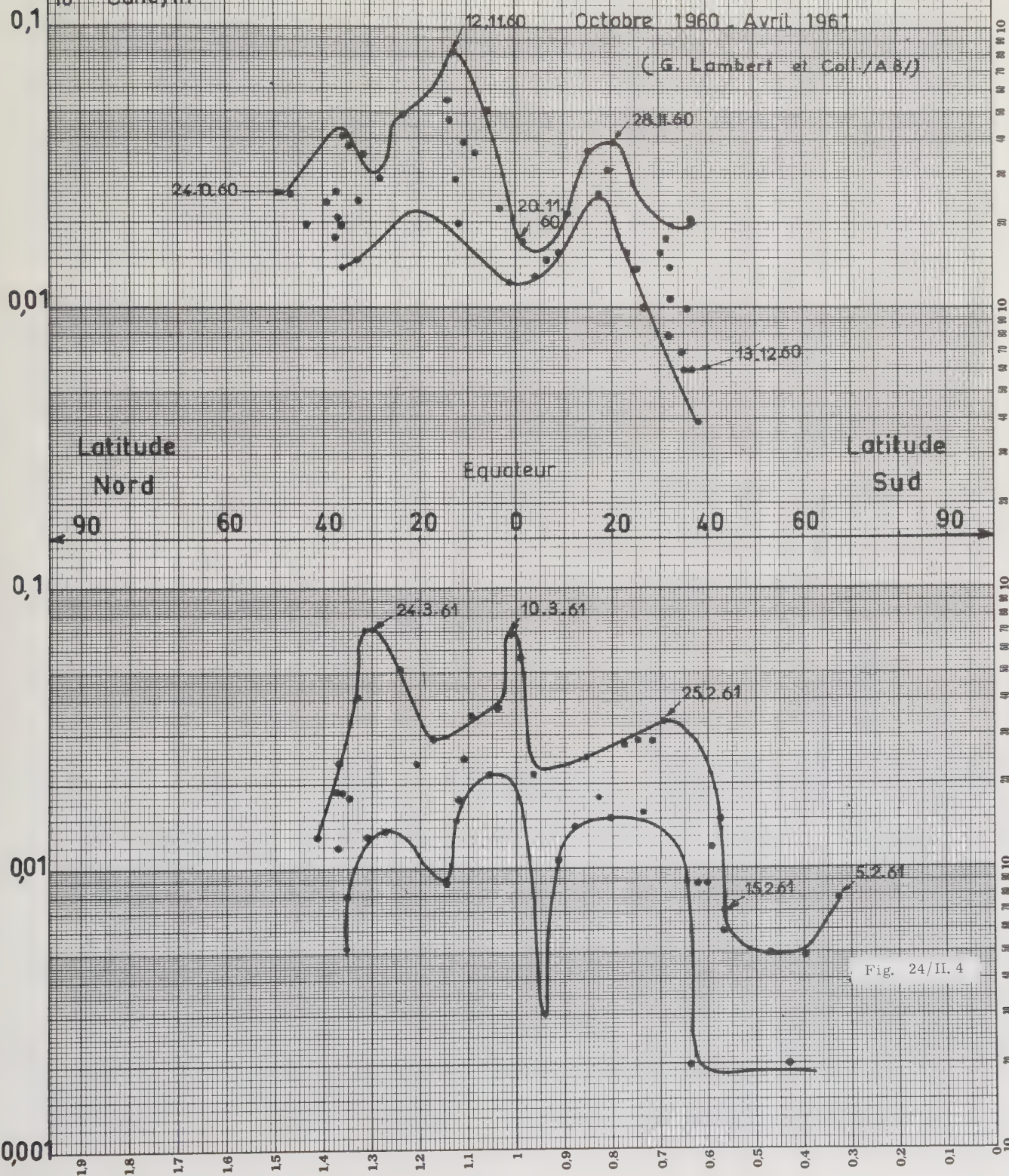


Fig. 24/II.4

Trois séries d'explosions se succèdent :

- 1/ Explosions soviétiques de Septembre à Novembre 1961.
- 2/ Explosions américaines de Avril à Juillet 1962.
- 3/ Explosions soviétiques et américaines de Août à Novembre 1962.

Ces explosions ont une puissance totale qui égale au moins le double de toutes les explosions enregistrées de 1952 à 1958. De plus, un certain nombre d'entre elles ont lieu dans la stratosphère. On doit donc s'attendre à ce que l'ensemble des débris de ces explosions se retrouve dans la stratosphère, et que les mécanismes de transfert jouent de façon plus importante que jamais. Or, assez paradoxalement, le caractère dominant de la contamination de l'atmosphère, au cours de cette période, est d'être une contamination troposphérique (G. Lambert /L8/).

Premier critère : la montée d'activité est extrêmement brutale et d'autant plus que les stations de prélèvements sont plus septentrionales : ainsi à Lille, l'augmentation de radioactivité atteint un facteur 100 en deux jours (voir figure 25). On peut d'ailleurs, comme en Février 1960, tracer sur une carte la progression du nuage radioactif, que nous indiquons figure 26. On voit que les stations septentrionales sont atteintes dès le 12 Septembre par un nuage progressant vers le Sud-Est, le sens de cette progression pouvant expliquer le fait que les stations du Nord de la France aient subi des augmentations plus brutales de radioactivité.

Deuxième critère : si nous examinons l'évolution de la radioactivité mensuelle moyenne des aérosols à Saclay de Août 1961 à fin 1962 (figure 27) nous constatons d'abord une montée continue et rapide jusqu'en Janvier 1962 ; on a ensuite une redescente (moins rapide que ne le laisserait prévoir le nettoyage de la troposphère combiné à la décroissance radioactive) ; enfin à partir de Mars 1962, nous assistons à une montée de type saisonnier, avec maximum en Juin et redescente très rapide en Juillet et Août (analogue à celle qui a suivi la montée du printemps 1959). La reprise des explosions dans les régions septentrionales, en Août 1962, se traduit par une remontée rapide de la radioactivité.

Si nous comparons cette évolution avec celle qui avait eu lieu en 1960-1961 (rappelée ici à une échelle X 10), nous pouvons noter que les courbes obtenues au printemps 1961 et 1962 sont parallèles. Mais alors que l'augmentation de printemps 1961 représentait un facteur 9 par rapport au mois de Novembre précédent, l'augmentation de 1962 n'est dans les mêmes conditions que de 12 %.

Troisième critère : l'étude de l'augmentation de la radioactivité en dehors de la France est encore plus révélatrice du caractère particulier de cette évolution. Le profil obtenu à bord du Magga-Dan, dans les mêmes conditions qu'à bord du Norsel, est très caractéristique /A9/.

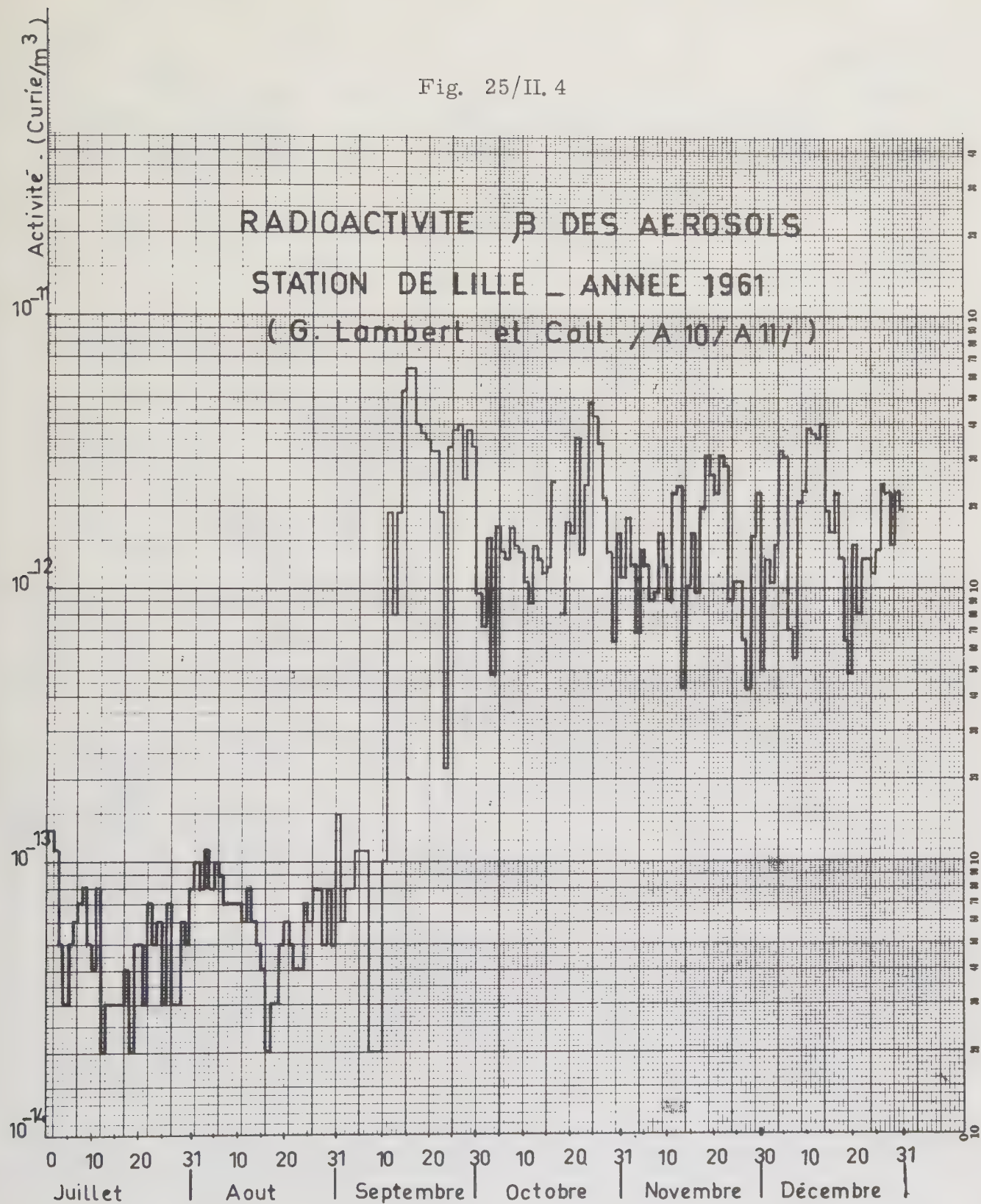
La figure 28 montre la variation de radioactivité des aérosols en fonction de la latitude. La surface hachurée correspond au parcours effectué en 1960 à la même saison. On constate que en dehors de la zone nouvellement contaminée, on retrouve exactement la courbe de l'année précédente, ce qui confirme la validité des résultats de 1960. De plus, nous constatons, dans la zone contaminée elle-même, la présence de deux maxima, faiblement marqués, exactement à la même latitude que l'année précédente à même époque, en dépit de la différence du niveau général de la contamination. La présence de ces maxima indique, si nos hypothèses sont justes, qu'une partie au moins des aérosols sont injectés depuis la stratosphère, suivant les mêmes lois que en 1960, donc avec les mêmes maxima locaux ou saisonniers. La faible importance relative de ces maxima indique alors que la majeure partie des aérosols ne provient pas de la stratosphère, toutefois leur faible amplitude rend leur existence même incertaine.

Les prélèvements, lors du voyage de retour en Février Mars 1962 ont été interrompus trop prématurément pour permettre une interprétation aussi poussée. Deux faits doivent néanmoins être retenus de ces dernières mesures :

1/ Un léger accroissement de radioactivité par rapport aux mesures effectuées au même endroit au cours du voyage aller. Parallèlement, on note une certaine décroissance rapide de la radioactivité des prélèvements (filtres 55 à 66). On conclut donc à la contamination faible des régions antarctiques, par les produits des explosions de Septembre 1961 dès le mois de Février 1962.

2/ L'existence en Février d'un maximum de radioactivité à la latitude de 50° Sud environ. Ce maximum est décalé par rapport au maximum de Novembre, ainsi qu'il en était l'année précédente, mais de façon plus accentuée, et son importance montre qu'il s'agit cette fois d'une contamination d'origine stratosphérique.

Fig. 25/II. 4



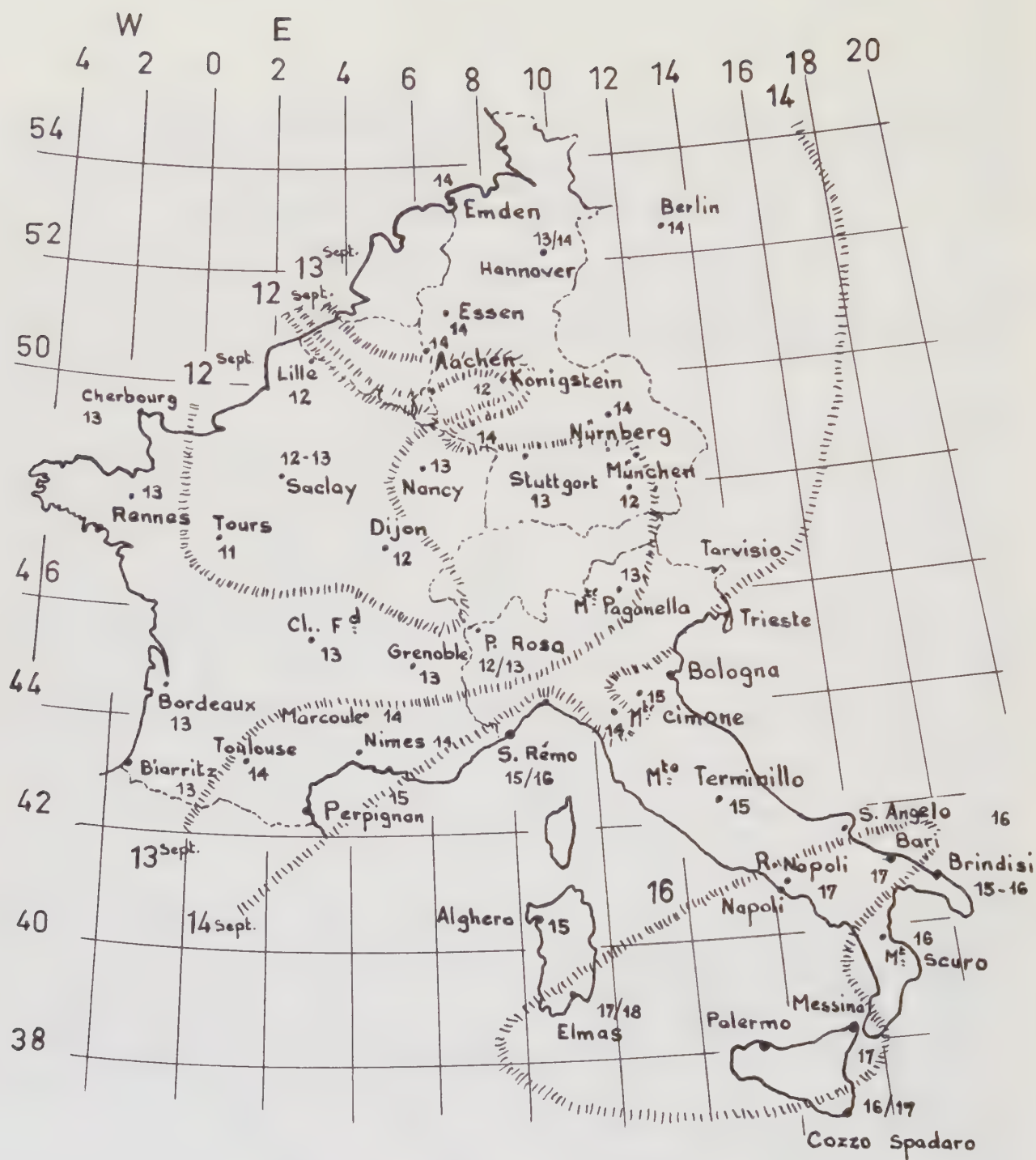


Fig. 26/II.4 - Augmentation de la radioactivité en septembre 1961 sur l'Europe Occidentale (G. Lambert/L8/).

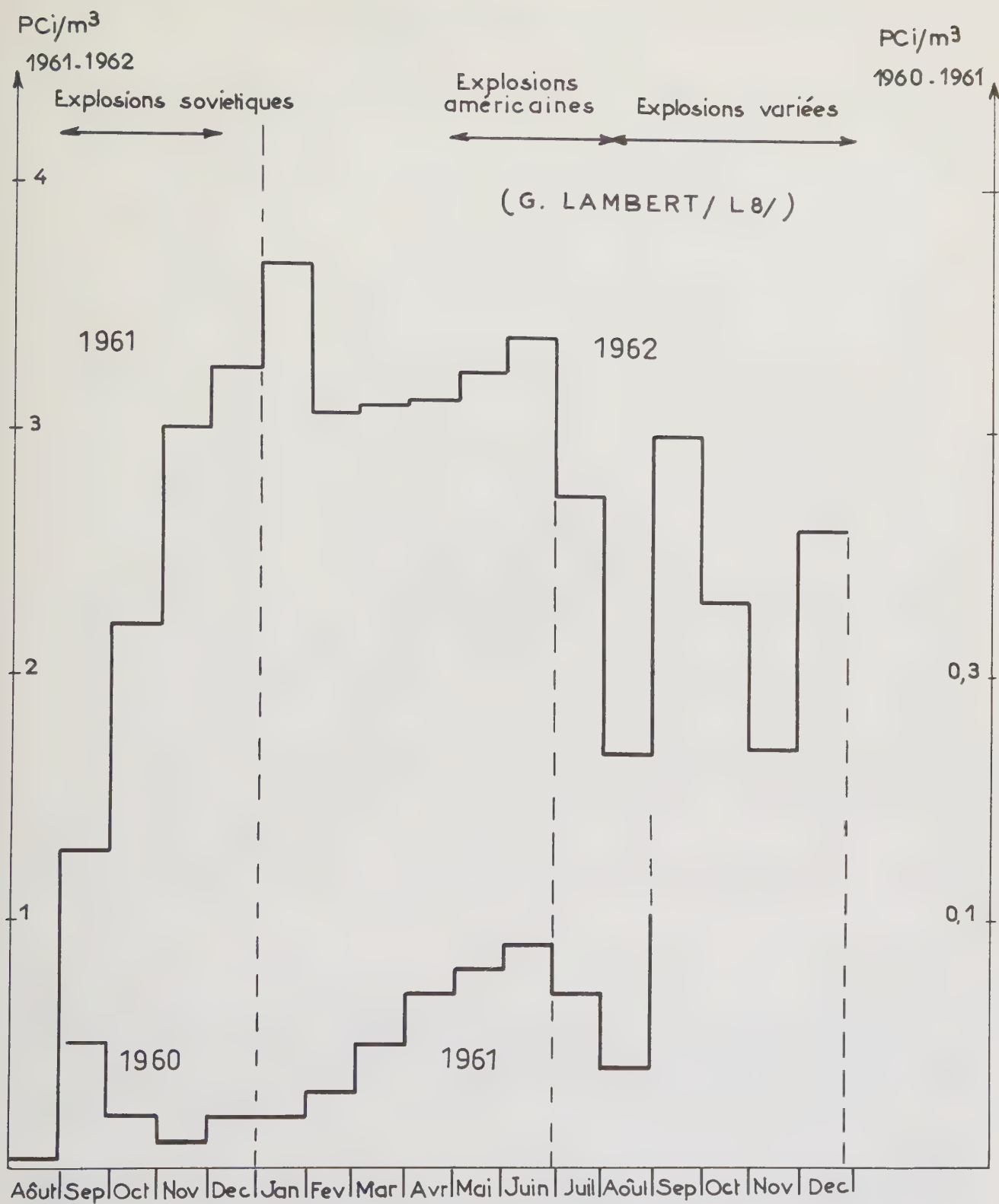


Fig. 27/II, 4 - Radioactivité β globale des aérosols à Saclay (G. Lambert /L8/).

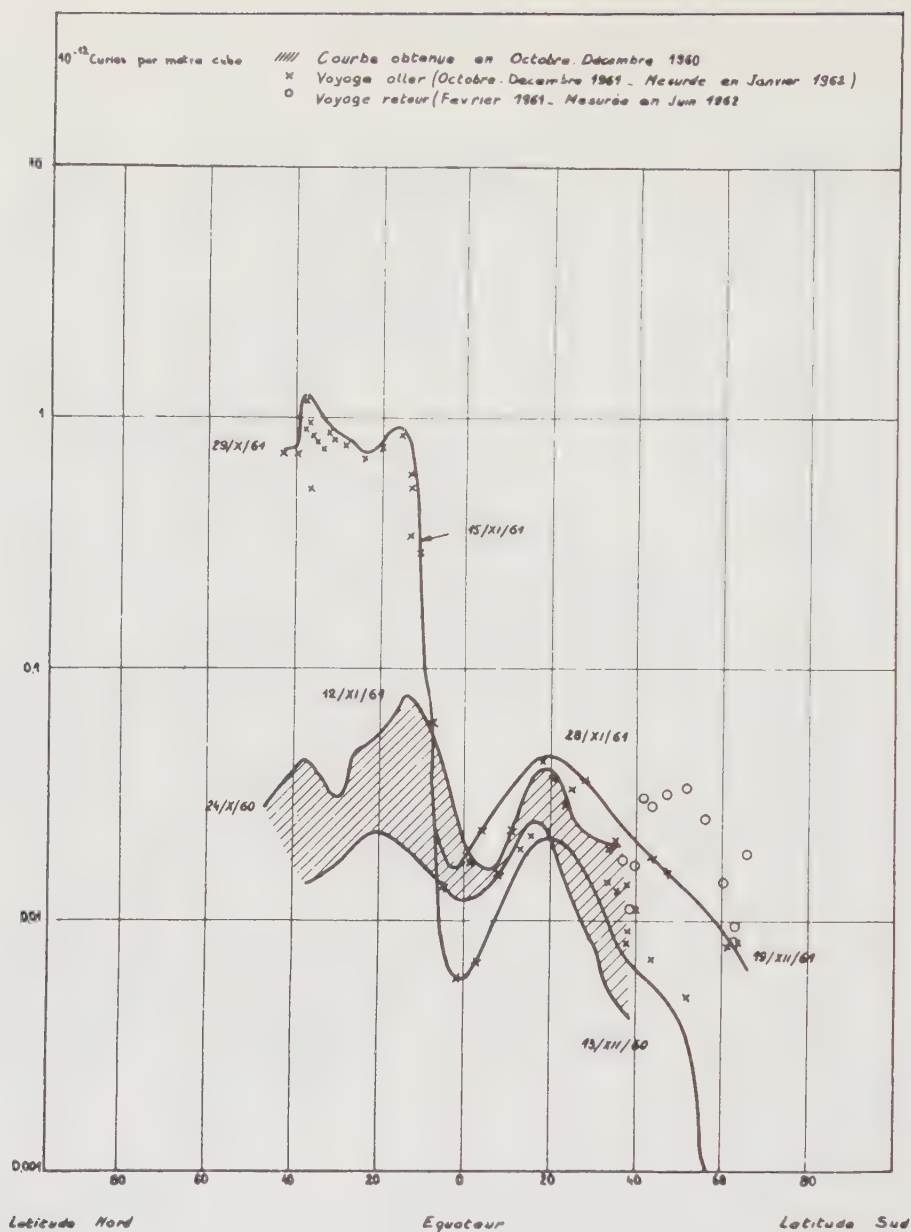


Fig. 28/II.4

L'ensemble de ces résultats est bien confirmé par les résultats obtenus dans les stations fixes, en dehors de la France, bien que la très faible augmentation de radioactivité dans l'hémisphère Sud, notée à bord du Magga-Dan, n'apparaisse pas aux Kerguelen ni en Terre Adélie (figures 21 et 22). Toutefois, les valeurs indiquées par Lockhart confirment cette légère augmentation /L21/.

Le déplacement troposphérique des débris radioactifs sera également confirmé par l'étude de la structure verticale de l'atmosphère au cours de cette période (cf. chapitre III - 2).

II - 4/5.2 - A partir du 25 Avril 1962 une nouvelle source de débris radioactifs est constituée par les explosions Américaines qui se produisent aux îles Christmas (environ 2° de latitude Nord). Les stations situées dans l'hémisphère Sud accusent dès le mois de Mai 1962 une nette augmentation (figure 29). On voit que dans l'ensemble la radioactivité augmente progressivement en Terre Adélie.

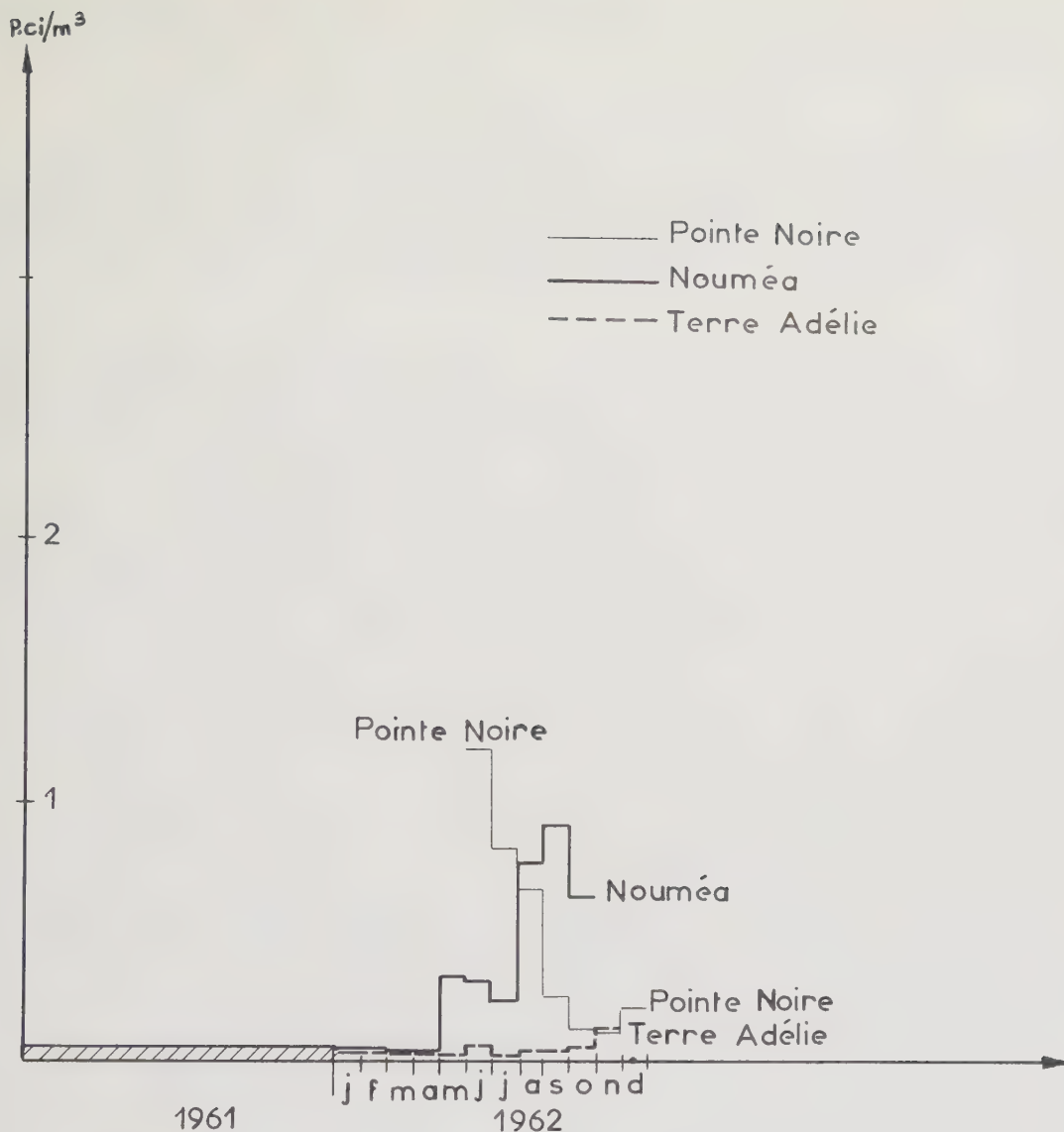


Fig. 29/II.4 - Radioactivité β globale des aérosols (G. Lambert et Coll./A11/).

Par contraste avec ces mesures, il est symptomatique que les débris de ces explosions ne puissent être détectés dans aucune station de l'hémisphère Nord, alors que nous avons pu mettre en évidence leur présence dans la stratosphère de la région parisienne (voir chapitre III - 2) /L7//C3/.

Il semble donc que là aussi nous soyons essentiellement en présence d'une retombée troposphérique, et que la barrière équatoriale ait interdit aux aérosols radioactifs artificiels de remonter vers le Nord, alors qu'ils pouvaient se répandre dans tout l'hémisphère Sud. Tout se passe donc comme si du point de vue atmosphérique, les îles Christmas avaient appartenu à l'hémisphère Sud entre Avril et Juillet 1962.

II - 4/5.3 - La reprise des essais soviétiques en Août 1962 complique l'analyse de la situation et rend les interprétations aussi difficiles qu'elles l'étaient en 1957-1958. Seul l'arrêt des explosions, l'inventaire stratosphérique et l'étude de la décroissance de la radioactivité artificielle permettraient, en 1963, de compléter ces études. On pourrait alors vérifier ce caractère troposphérique de la circulation des débris radioactifs en 1961-1962.

II - 4/6 - ETUDE DES VARIATIONS A COURT TERME DE LA CONCENTRATION DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS

II - 4/6.1 - Existence de discontinuités de radioactivité dans la basse atmosphère.

La majeure partie des résultats que nous avons établis dans les sections II - 4/3 à II - 4/5 était relative aux valeurs moyennes mensuelles de la radioactivité artificielle des aérosols. Nous avons indiqué au paragraphe II - 4/2.2 que cette période de un mois était en général suffisante pour intégrer les petites variations aléatoires de radioactivité qui apparaissent lorsqu'on examine une suite de valeurs obtenues (voir par exemple les figures 6 et 8). Nous nous proposons maintenant d'examiner si ces variations sont réellement aléatoires, ou si leur présence est le résultat de processus déterminés.

II - 4/6.1.1 - Les études que nous avons entreprises à l'aide de plusieurs appareils de prélèvements fonctionnant simultanément le long du pylone météorologique nous ont montré que les variations observées étaient généralement en phase, dans les quatre appareils, et les valeurs numériques si voisines qu'il est impossible de considérer ces variations comme une fluctuation du prélèvement, de la concentration, ou de la qualité des aérosols radioactifs artificiels autour de la station de prélèvements. L'observation des différents graphiques obtenus (figures 9, 10, 11 et surtout 12), montre que généralement les résultats numériques sont groupés par 2, 3 ou même 7 ou 8 valeurs successives appartenant au même groupe, ce qui, à raison d'une mesure toutes les 3 heures, correspond au passage d'une masse d'air bien déterminée au dessus de la station, pendant 6 à 24 heures. Si nous tenons compte du fait que aucun gradient vertical important ne semble exister dans les 200 à 300 premiers mètres de l'atmosphère, nous pouvons nous représenter la station de prélèvements comme située à l'intérieur d'une lentille d'air à peu près homogène, de quelques centaines de mètres de haut, et de 50 à 100 km de diamètre. Au bout du temps nécessaire au passage de cette masse d'air, la station de prélèvements se trouve plongée dans une nouvelle unité atmosphérique, qui peut différer considérablement de la précédente. Ces conceptions sont à rapprocher des cas signalés au chapitre II - 3 où des masses d'air continentales pénètrent loin en mer, avec leur concentration initiale de radon.

Vu les résultats des mesures effectuées toutes les 3 heures, il devient évident que les mesures quotidiennes, d'une durée de 24 heures, pourront être complètement différentes d'un jour à l'autre, ou d'une période de quelques jours à une autre, ces différences étant évidemment d'autant plus tranchées que le prélèvement a pu être effectué à l'intérieur d'une seule lentille ou à cheval sur deux ou plusieurs de ces unités atmosphériques. Un cas particulièrement net est fourni par les valeurs quotidiennes très faibles, que l'on rencontre de temps en temps (voir par exemple la figure 8) et dont l'existence nécessite que, pendant la durée du prélèvement, la ou les masses d'air ayant rencontré la station de prélèvements, aient été toutes très faiblement contaminées (dans le cas contraire, on aurait une valeur moyenne ou faible, mais surement pas *très* faible).

Ces résultats expliquent l'aspect désordonné des graphiques relatifs à un groupe de stations peu éloignées, ce que nous avons souligné figure 7, les variations concomitantes restant une exception.

II - 4/6.1.2 - Quelques exemples de ces exceptions ont pu être mis en évidence. En particulier, citons le cas du 3 au 6 Novembre 1960 où la moitié Nord de la France se trouvait soumise à un flux d'air polaire bien caractérisé, tandis que la moitié Sud était traversée par un flux d'air tropical. On voit bien sur la figure 30 que le 1er Novembre toutes les stations accusent une radioactivité très faible (0,01 pCi/m³). Ce même jour, l'ensemble de la France était soumis à un flux caractéristique d'air polaire. Le 2 des changements commencent à se produire. Le 3, seule la partie Nord Ouest de la France est encore soumise à ce flux d'air polaire, et à l'exception de Lille, Rennes, Dijon (?) et Biarritz, la radioactivité accuse une nette remontée. Le 4, la situation est moins claire, mais le 5, presque toute la France est de nouveau traversée par le flux d'air polaire et seules les stations de Dijon et Tours accusent une légère radioactivité. Enfin le 6, Biarritz et Toulouse qui échappent seules au flux d'air polaire sont également seules à présenter une radioactivité plus élevée.

II - 4/6.1.3 - A l'exception de ce dernier cas, considéré justement comme exceptionnel, presque tous les exemples de variations quotidiennes que nous avons indiqués étaient choisis dans la dernière grande période radioactive que nous avons définie (Août 1961 - Décembre 1962). A ce moment le niveau de radioactivité était assez élevé pour qu'aucun phénomène parasite ne puisse fausser ces ensembles de valeurs numériques, et d'autre part, l'importance des discontinuités observées entre masses d'air voisines n'était pas surprenante, à une époque où les explosions nucléaires continuaient à se produire, et où les différents nuages de débris, plus ou moins fractionnés, conservaient leur individualité propre (et surtout leur âge propre).

Oct. 1960

Novembre 1960

Déc. 1960

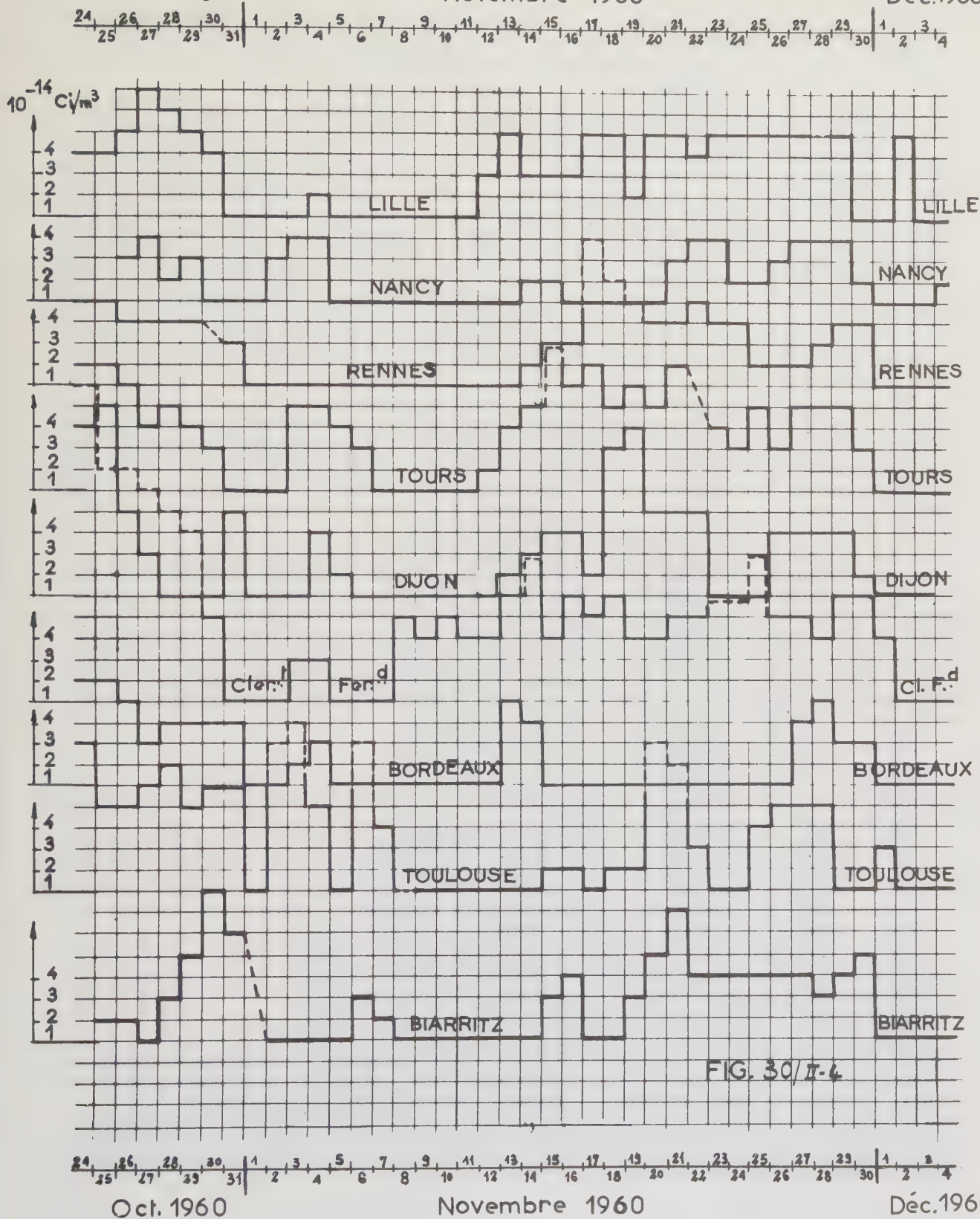


FIG. 30/II-4

Oct. 1960

Novembre 1960

Déc. 1960

Fig. 30/II.4 - Diagramme des variations quotidiennes de la radioactivité β globale des aérosols pour différentes stations françaises (G. Lambert et Coll./A10/).

Il n'en est plus du tout de même si nous nous intéressons à la période qui va de Avril 1960 à Août 1961, particulièrement dans le cas des stations de mesures situées en France, période choisie justement parce qu'aucun nuage radioactif frais n'est intervenu. Dans ce cas des fluctuations quotidiennes importantes ne sont plus explicables aussi simplement. Pourtant, le seul examen de la figure 8 nous montre l'importance et la fréquence de ces fluctuations.

II - 4/6.2 - Caractère des variations quotidiennes en 1960-1961.

Si nous traçons, en coordonnées linéaires, le graphique des valeurs quotidiennes de radioactivité artificielle des aérosols enregistrées dans une station donnée en 1960-1961, nous observons un très grand nombre de pics de radioactivité, s'étalant sur un ou plusieurs jours, et séparés par des fossés très profonds, de durée généralement courte. Sur la figure 31, nous avons ainsi représenté le graphique obtenu durant le 1er semestre 1961 à Tours. On y reconnaît aisément l'augmentation printanière de Avril à Juillet 1961. Le découpage de la courbe paraît plus faible durant les mois de Janvier, Février et Août. Au contraire, les mois qui correspondent aux valeurs moyennes les plus élevées sont ceux où les pics paraissent être les plus hauts et les plus nombreux. Il semble ainsi à première vue que cette augmentation saisonnière de la moyenne mensuelle soit due non pas à une élévation générale et continue de la concentration des masses d'air en aérosols radioactifs artificiels, mais bien plutôt, à l'arrivée d'un nombre de plus en plus grand de pics de plus en plus élevés.

Si nous rapprochons cette observation de celle que nous avons faite, § II - 4/4.5 à propos de la figure 24, à savoir que la dispersion des mesures (c'est-à-dire l'importance des fluctuations quotidiennes) était la plus élevée dans les zones de latitude où la concentration de l'air en aérosols radioactifs artificiels était également la plus élevée, nous pouvons conclure que la fréquence et l'amplitude de ces fluctuations semblent intimement liées à l'importance de la contamination des masses d'air.

II - 4/6.3 - Essais d'interprétation de ces fluctuations.

Si nous admettons que les fluctuations observées en 1960-1961 sont bien réellement l'indice d'une contamination très irrégulière de masses d'air voisines, ce résultat apparaît des plus troublants. Les dernières explosions nucléaires à prendre en considération datent en effet du mois de Novembre 1958 (soit de plus de 14 mois en Avril 1960, 30 mois en Août 1961). Les différences de concentrations observées sont donc imputables à des processus atmosphériques de circulation ou de diffusion, qui vont à l'encontre des lois générales régissant cette catégorie de phénomènes qui tendent habituellement à accroître le degré d'homogénéité (croissance de l'entropie des systèmes isolés).

Trois types de phénomènes pourront néanmoins expliquer ces résultats :

Première hypothèse : les masses d'air circulant ont été contaminées de manière uniforme, mais nettoyées différemment, par les divers processus possibles, tels que nous les avons mentionnés dans la Première Partie.

Cette hypothèse expliquerait de façon très satisfaisante l'aspect qualitatif des phénomènes observés. Elle revient à admettre qu'en absence de ce nettoyage irrégulier, le graphique obtenu figure 31 serait voisin de l'enveloppe extérieure des pics, le nettoyage introduisant des discontinuités, sous forme de creux plus ou moins profonds, laissant entre eux subsister quelques pics.

Cette hypothèse appelle néanmoins de puissantes objections :

1/ Dans certains cas, des masses d'air auraient été nettoyées de leurs aérosols radioactifs à 90 %, bien que les lentilles voisines aient conservé l'intégralité de leur contamination, ce qui paraît tout à fait invraisemblable.

2/ Les phénomènes de diffusion turbulente à la limite des masses d'air sont tels que deux masses contigües dont la contamination serait très différente ne pourraient généralement pas le rester au-delà de quelques jours. Les études de diffusion du radon au dessus de l'océan (chapitre II - 3) montrent l'importance énorme du brassage déjà réalisé en 5 jours. Par conséquent, les masses d'air très faiblement contaminées ont nécessairement été nettoyées au maximum quelques jours avant leur passage à la station de prélèvements. Ceci implique que ce nettoyage très poussé serait effectué en un temps extrêmement court, incompatible à première vue, avec le temps moyen de demi-nettoyage de la troposphère de 20 à 30 jours, tel qu'il ressort des études les plus diverses signalées dans la Première Partie. On peut admettre qu'un nettoyage d'une extrême violence survienne dans quelques cas isolés, mais la fréquence des masses d'air très faiblement contaminées n'est pas

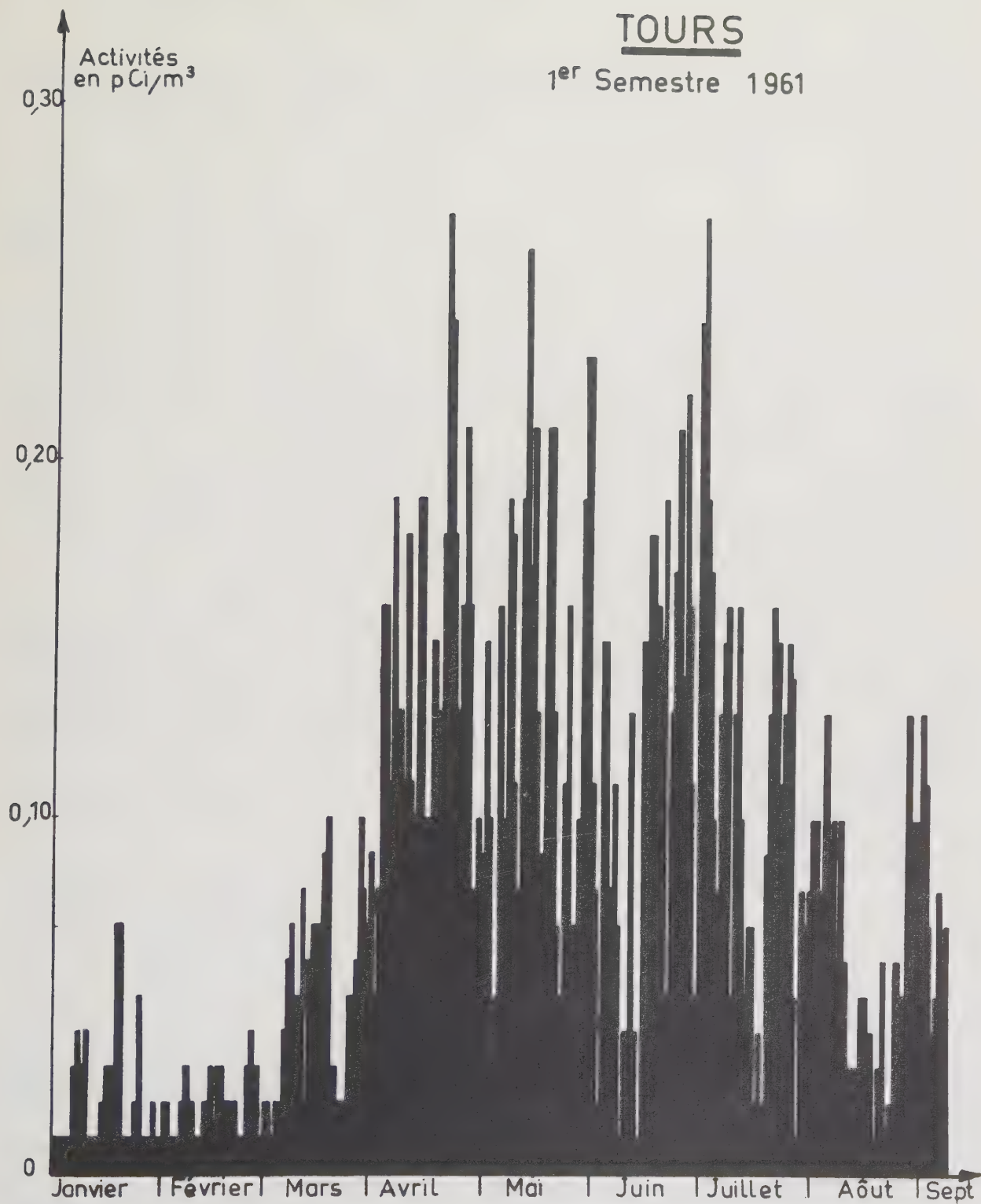


Fig. 31/II.4 - Radioactivité β globale artificielle des aérosols (G. Lambert et Coll./A10/).

compatible avec la nécessaire rareté de ce phénomène violent. N'oublions pas en effet que seules les masses d'air faiblement contaminées ayant traversé la station de collection pendant quasiment toute la durée du prélèvement, donnent lieu sur le graphique à un puits profond (cf. remarque du § II - 4/6.1.1).

3/ Enfin cette explication cadre mal avec la constatation que nous avons faite au § II - 4/6.2, relativement à la liaison intime entre la fréquence des pics et l'existence d'un maximum géographique ou saisonnier. En particulier l'examen des courbes de retombées radioactives mensuelles, que nous indiquerons dans la Quatrième Partie, ne permet pas de retrouver ces liaisons.

Deuxième hypothèse : les masses d'air successives proviendraient de zones de latitude où la contamination moyenne est différente.

Une telle explication a été reconnue valable dans quelques exemples exceptionnels, ainsi que nous l'avons mentionné au § II - 4/6.1.2. Toutefois, son caractère exceptionnel résulte très précisément du fait que les masses d'air sont particulièrement hétérogènes au voisinage des maxima de latitude ce qui rend improbable le voisinage d'une masse d'air fortement contaminée, en provenance d'une zone subtropicale, et d'une masse d'air faiblement contaminée, d'origine polaire.

Outre le fait que cette hypothèse cadre mal avec l'abondance plus élevée des pics, au voisinage d'un maximum, notons que dans l'hémisphère Nord, en 1960-1961, les valeurs maximales enregistrées à certaines latitudes n'étaient que rarement 4 à 6 fois plus élevées que les valeurs correspondant au minimum de latitude. Les fluctuations quotidiennes les plus importantes exigeraient donc que l'effet de latitude ait joué au maximum, et ces fluctuations devraient donc être aussi rares que les corrélations du type indiqué ci-dessus, ce qui n'est certainement pas le cas.

Troisième hypothèse : il reste une troisième explication qui tire son intérêt de l'échec des deux précédentes tentatives : la contamination des masses d'air circulant à basse altitude, à partir du réservoir stratosphérique, serait un phénomène éminemment discontinu, et sa probabilité variable, avec la latitude et la saison. Ainsi, un plus grand nombre de contaminations discrètes pourraient provoquer l'apparition d'un maximum géographique ou saisonnier.

II - 4/6.4 - Analyse statistique de la répartition des pics de radioactivité.

II - 4/6.4.1 - C'est l'analyse précise des résultats obtenus qui va nous permettre de vérifier si cette troisième hypothèse a quelque chance de correspondre à la réalité. Après diverses tentatives malheureuses d'apprécier le degré de variabilité de la radioactivité quotidienne des aérosols radioactifs artificiels, nous avons fait porter notre étude sur les caractères topologiques des courbes obtenues, c'est-à-dire sur le nombre de maxima observés durant une période de temps donnée (un mois par exemple). Encore faut-il définir ce qu'on appelle un maximum, compte tenu des possibilités d'erreurs de mesures, variables avec le niveau moyen de la radioactivité. Après tâtonnements nous avons adopté la règle suivante :

On considère que l'on a affaire à un maximum à condition que l'écart entre la valeur maximale et la plus élevée des valeurs minimales situées de part et d'autre soit :

- | | |
|-----------------|---|
| 1/ En 1960-1961 | 0,02 pCi/m ³ pour un maximum < 0,09 pCi/m ³ |
| | 0,03 pCi/m ³ pour un maximum compris entre 0,10 et 0,15 pCi/m ³ |
| | 0,04 pCi/m ³ pour un maximum compris entre 0,16 et 0,20 pCi/m ³ |
| | 0,05 pCi/m ³ pour un maximum compris entre 0,21 et 0,25 pCi/m ³ |
| | 0,06 pCi/m ³ pour un maximum > 0,26 pCi/m ³ |
| 2/ En 1962 | ≥ 20 % du maximum. |

Dans ces conditions nous avons examiné les résultats des stations françaises suivantes : Lille, Nancy, Rennes, Tours, Dijon, Clermont-Ferrand, Bordeaux, Toulouse, Biarritz, plus en 1962, Saclay.

Les tableaux V et VI, ci-dessous, indiquent le nombre de maxima observés mensuellement dans chaque station.

Tableau V
Nombre de maxima en 1960 - 1961

Stations	1 9 6 0								1 9 6 1							
	Mai	Juin	Juil.	Août	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.	Janv.	Fév.	Mars	Avr.	Mai	Juin	Juil.	Août
Lille	5	6	7	2	5	4	2	4	5	4	7	6	7	5	6	5
Nancy	6	7	6	6	3	3	3	1	3	4	5	6		6	8	5
Rennes	5	8	8	3	4	5	2	1	3	4	5	7	7	6	6	6
Tours			4	6	5	4	4	2	4	4	5	7	7	6	8	6
Dijon	7	5	7	5	5	4	4	2	4	4	3	5	6	8	5	4
Clermont Ferrand	6	3	5	5	4	3	4	3	4	1	4	4	8	5	5	5
Bordeaux	6	4	4	4	4	7	3	3	6	4	3	4	7	7	5	6
Toulouse	6	4	6	4	3	7	4	5	7	5	5	6	8	6	5	6
Biarritz	6	3	6	6	3	5	4	3	4	4	3	5	7	6	3	4

Tableau VI
Nombre de maxima en 1962

Stations	Janvier	Février	Mars	Avril	Mai	Juin	Juillet	Août
Lille	7	4	7	6	7	6	6	6
Nancy	9	4		5	5	4	5	5
Rennes	9	7	5	6	7	7	5	6
Tours	6	4	6	6	4	5	6	4
Dijon	5	5	6	6	6	5	6	6
Clermont-Ferrand	7	6	5	6	6	4	5	5
Bordeaux	7	6	7	5	6	5	5	6
Toulouse	7	5	6	6	4	5	5	5
Biarritz	5	4	6	7	5	5	6	3
Saclay	9	5	7	5	5	4	6	6

Si l'on examine mois par mois ces résultats, on voit que la répartition des nombres de maxima est proche d'une courbe de Gauss (bien que le nombre de stations soit limité à 9 ou 10, ce qui est insuffisant). La valeur moyenne du nombre de maxima sera donc bien en général la valeur la plus probable. Si nous comparons l'évolution de cette valeur et la concentration moyenne des aérosols radioactifs, nous constatons, figure 32, que ces deux courbes sont strictement parallèles, durant la première période (Mai 1960 - Août 1961), c'est-à-dire que la valeur probable la plus élevée du nombre de pics coïncide avec la plus forte moyenne obtenue, en Mai. Ceci nous montre que les observations qualitatives effectuées, notamment figure 31, sont vérifiées par l'analyse statistique, et cela confirme que les critères choisis pour dénombrer les pics n'ont pas altéré le phénomène étudié. Sur la figure 33 relative à la deuxième période, on ne peut plus observer cette similitude. Or, nous avons montré que à partir de Août 1961, la contamination de la basse atmosphère au-dessus de la France était typiquement troposphérique /L8/. Nous voyons donc que la corrélation existant de Mai 1960 à Août 1961, entre le nombre de pics et la valeur moyenne de la concentration des aérosols radioactifs artificiels est caractéristique des transferts stratosphère-troposphère.

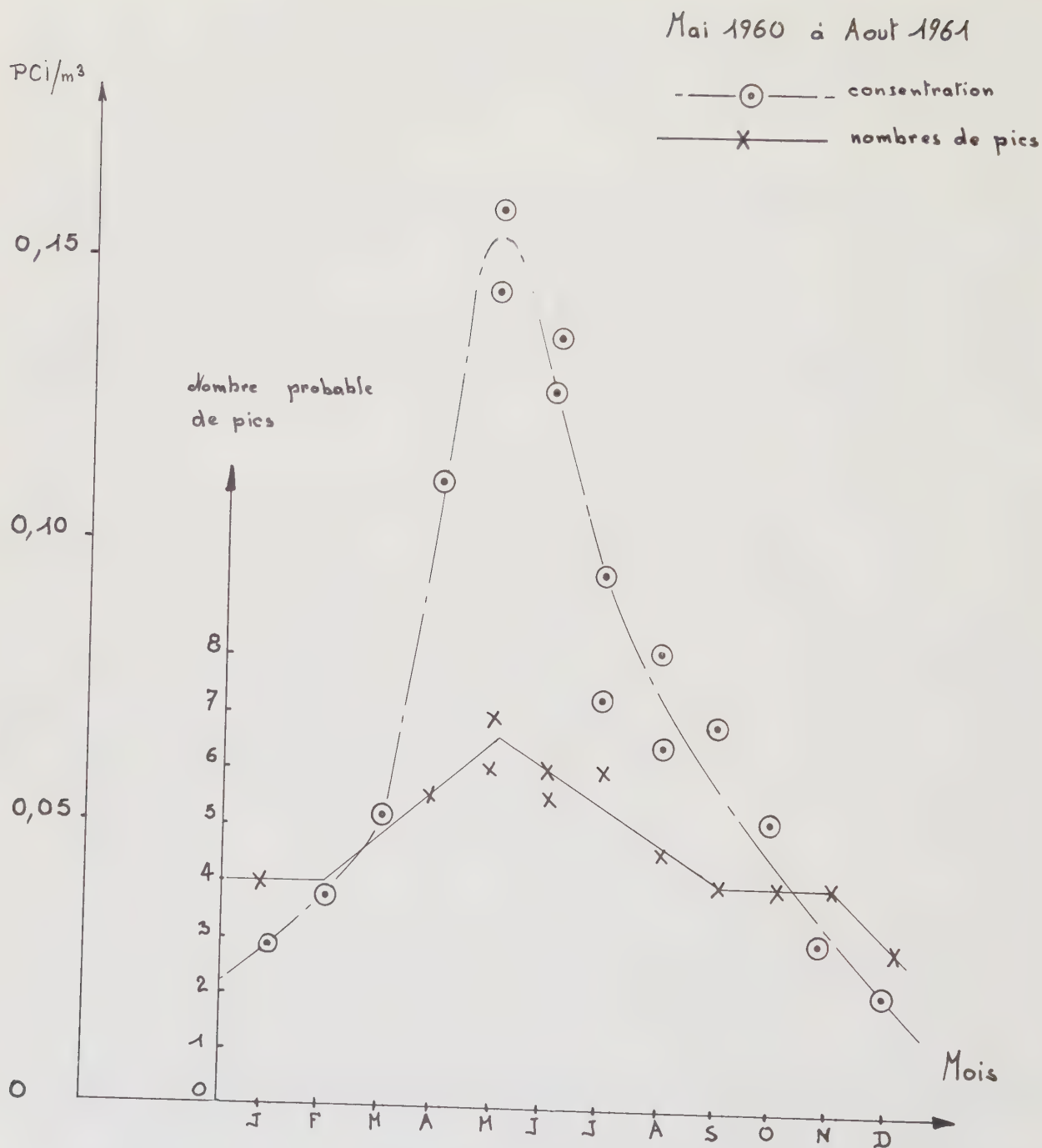


Fig. 32/II, 4 - Concentration moyenne des aérosols radioactifs artificiels (G. Lambert /L11/).

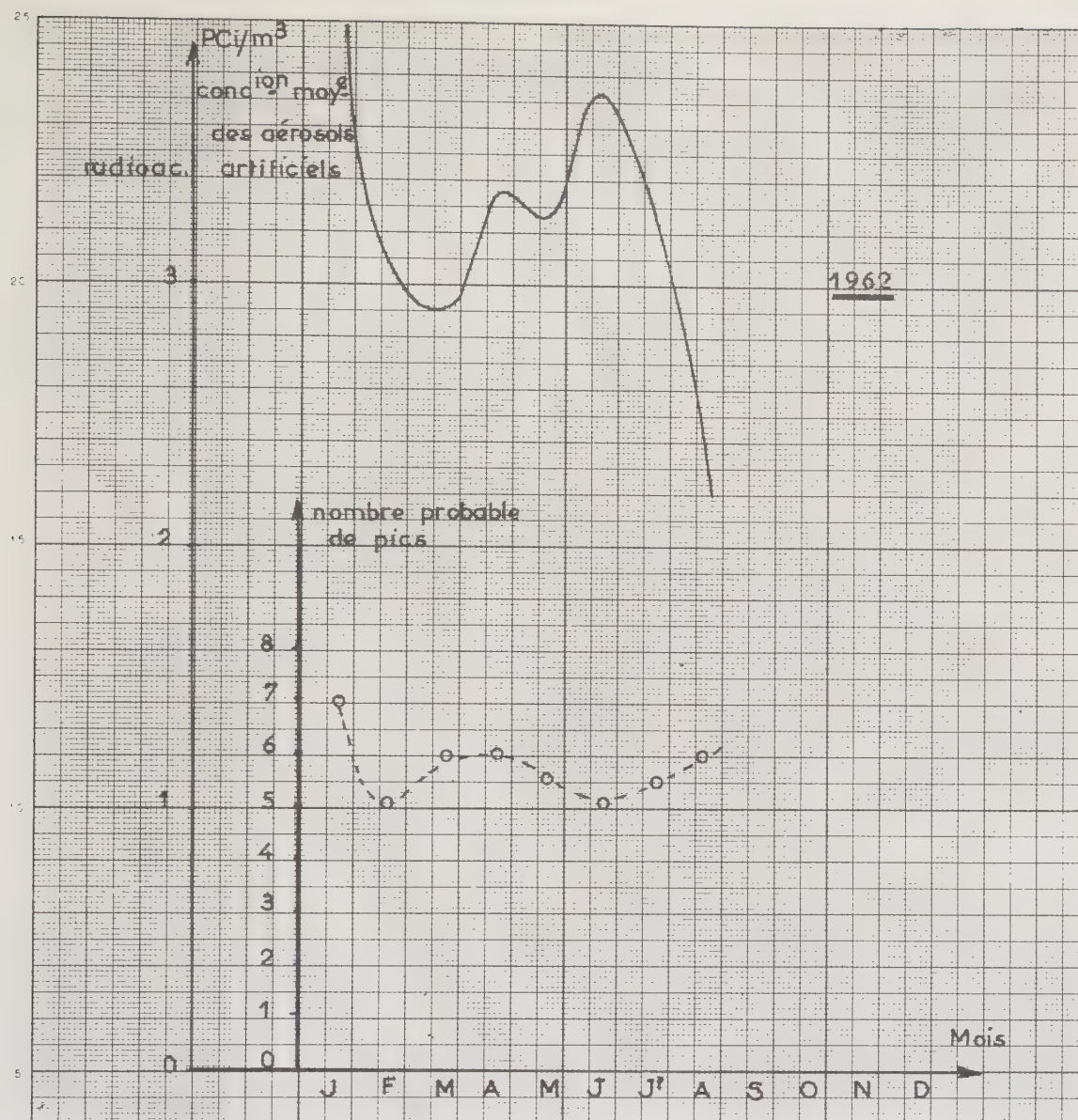


Fig. 33/II.4 - Concentration mensuelle moyenne des aérosols radioactifs artificiels et nombre probable de pics de radioactivité (G. Lambert /L11/).

II - 4/6.4.2 - Si nous examinons maintenant comment varie au cours de l'année la latitude de la station présentant le plus grand nombre de pics, nous voyons, figure 34, que cette évolution est parallèle à celle du déplacement apparent du soleil, et assez proche du déplacement de l'axe du courant jet tropical, telle qu'il est indiqué par L. Weickmann /W3/. En fait, l'absence de station au-dessous de 43° de latitude Nord explique l'aplatissement de la courbe entre Décembre et Mars, la latitude de la station ayant le plus grand nombre de pics étant probablement plus méridionale à cette époque.

Assez curieusement, on peut comparer cette courbe avec celle du déplacement en latitude de la station ayant la concentration mensuelle moyenne la plus élevée (également tracée figure 34). Les deux courbes sont assez parallèles, mais la deuxième est retardée de deux mois par rapport à la première. Un tel décalage est à rapprocher du décalage de 50 jours signalé par Philippot /P2/ entre l'enregistrement de la radioactivité à 10 km d'altitude et celui qui est obtenu au niveau du sol. Ainsi, pour conclure, les maxima de radioactivité au niveau du sol semblent corrélés à la concentration des aérosols observée dans la tropopause, mais deux mois de délai seraient nécessaires, pour qu'ils produisent une élévation de la radioactivité moyenne au niveau du sol.

1960 - 1961 (Sauf fév. à Avril 1960)

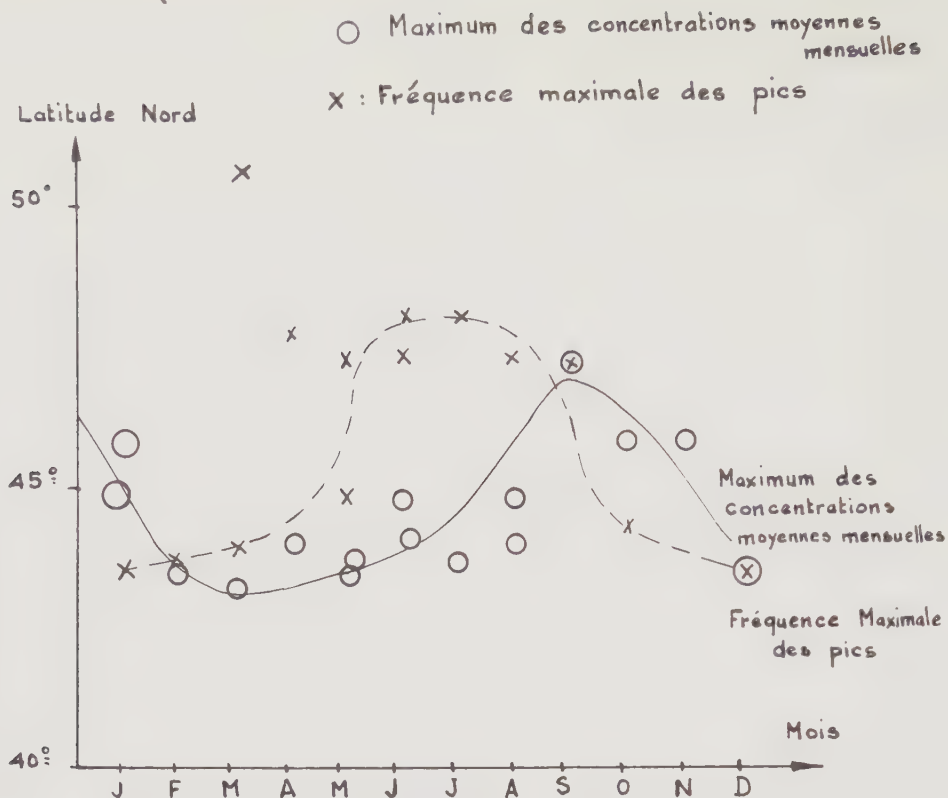


Fig. 34/II.4 - (G. Lambert /L11/).

II - 4/6.4.3 - Critique des résultats.

Les résultats que nous venons d'établir semblent nets et statistiquement valables. Toutefois, cette validité est diminuée par suite du faible nombre de stations considérées, et en particulier l'absence de toute station en dessous de 43° de latitude Nord. De plus, le nombre de maxima varie peu d'une station à une autre, et certains maxima se produisant à la limite entre deux mois consécutifs sont difficilement attribuables à une période plutôt qu'à l'autre. Ceci fait que la détermination de la station ayant le plus grand nombre de maxima est parfois délicate, et par suite sa latitude moins significative. Il reste que ces résultats sont parfaitement cohérents et correspondent bien à ce que nous avons indiqué précédemment à propos du déplacement saisonnier de la latitude du maximum de concentration.

II - 4/7 - INTERPRETATION DES RESULTATS

L'ensemble des faits que nous avons signalés au cours de ce chapitre peut se résumer de la façon suivante :

- 1/ Lors d'une explosion nucléaire, seuls les débris troposphériques sont rapidement détectés, au niveau du sol.
- 2/ Une grande partie des débris sont injectés dans la stratosphère où, par suite de la faiblesse des phénomènes de nettoyage, et la lenteur de la décantation par gravité, ils peuvent s'accumuler pour constituer un réservoir stratosphérique (cf. Troisième Partie).
- 3/ En général, exception faite pour la période qui va de Septembre 1961 à Février 1962, la concentration observée au niveau du sol dépend, outre l'âge des radionuclides formés, des processus de transferts de la stratosphère à la troposphère et de la circulation troposphérique.
- 4/ Compte tenu de l'existence d'une barrière troposphérique équatoriale, et de la contamination inégale des hémisphères Nord et Sud, ces processus de transfert doivent expliquer :

a) l'existence d'un maximum de concentration à une latitude variable avec la saison, et suivant approximativement les déplacements apparents du soleil.

b) l'intensification des échanges aux mois de Mai et Juin dans l'hémisphère Nord.

c) la contamination de la basse atmosphère, d'autant plus discontinue que l'on se trouve plus près du maximum, géographiquement et chronologiquement parlant.

d) le retard de deux mois de la radioactivité moyenne au niveau du sol, par rapport à la radioactivité de la tropopause et à l'abondance des maxima au niveau du sol.

L'ensemble de ces quatre dernières constatations peut être expliqué, si nous supposons que les transferts de la basse stratosphère vers la troposphère ont lieu de façon discontinue, c'est-à-dire par bouffées, dont la fréquence varierait en fonction de la latitude et de la saison, et dont l'efficacité serait plus élevée au printemps /L11/. Ainsi, au printemps boréal, ces transferts seraient particulièrement importants et se produiraient de préférence aux latitudes moyennes, expliquant l'importance du maximum de printemps observé à ces latitudes.

Nous discuterons de l'ensemble de ce problème dans la Cinquième Partie.

TROISIÈME PARTIE

LES AÉROSOLS RADIOACTIFS
DANS LA HAUTE ATMOSPHÈRE

CHAPITRE III. 1

BUTS ET TECHNIQUES DES PRELEVEMENTS EN HAUTE ATMOSPHERE

III - 1/1 - Dès les premières explosions nucléaires à forte puissance, on a constaté que l'échauffement de l'air créait un courant ascendant tel que la plus grande partie des débris de l'explosion était entraînée dans la stratosphère (cf. Tableau V § II - 1/7.4). L'explosion de bombes à haute altitude a encore renforcé cette tendance.

Les résultats des études entreprises au niveau du sol ont rapidement conduit à supposer que les aérosols radioactifs artificiels ainsi introduits dans la haute atmosphère s'y accumulaient pour former un réservoir stratosphérique, susceptible d'alimenter petit à petit la troposphère, en dépit du lessivage intense qui règne dans cette zone de l'atmosphère.

La nécessité s'est donc faite sentir rapidement de vérifier la présence de ce réservoir, de chiffrer son contenu, de mesurer la vitesse de décantation dans les couches supérieures, et de déterminer le processus d'alimentation de la troposphère à partir de ce réservoir. Ces études, de caractère physique, avaient d'ailleurs des objectifs lointains purement hygiénistes. En effet, l'intensité de l'irradiation due aux retombées radioactives dépend considérablement du temps mis par ces dernières à atteindre la biosphère : un temps de résidence stratosphérique long à pour effet de permettre la décroissance radioactive des produits créés et diminue par suite les risques biologiques. D'autre part, l'inventaire du réservoir et la connaissance de son taux de formation et de vidange ainsi que la détermination des processus de transfert de la stratosphère à la troposphère, permettrait de prévoir les époques et les lieux où les risques d'irradiation seront les plus élevés. Enfin, mentionnons pour mémoire, que la connaissance exacte, physique et chimique, de la composition du mélange de débris radioactifs n'est pas sans intérêt sur le plan militaire.

III - 1/2 - GENERALITES SUR LES TECHNIQUES DE PRELEVEMENTS EN HAUTE ALTITUDE

III - 1/2. 1 - Tout ce que nous avons dit dans la Deuxième Partie sur les méthodes de collection et de mesure des aérosols reste vrai, à haute altitude, à ceci près que :

- a) le matériel de collection devra être adapté aux conditions de la haute atmosphère,
- b) les valeurs adoptées au niveau du sol pour le débit, et le rendement de filtration, devront être réexaminées,
- c) il sera nécessaire de trouver un véhicule capable de transporter à l'altitude voulue les dispositifs de collection,
- d) enfin l'expression et la comparaison des résultats aux différentes altitudes devra tenir compte des modifications de la densité de l'atmosphère.

III - 1/2. 2 - Il semble que les premiers prélèvements aient été effectués en avion par Edvarson (1957) /E1/ au-dessus de la Suède. D'autres études ont été entreprises sur le même principe en Grande-Bretagne, par Peirson et coll. (1960) /P1/, en France par Philippot (1961) /P2/, mais surtout au dessus de tout le continent américain par la "Defense Atomic Support Agency" grâce au "High Altitude Sampling Program" développé à partir de 1956, et dont les résultats ont été publiés dans deux rapports préliminaires Hasp-1 (1960) /S8/, Hasp-2 (1961) /S9/ et surtout dans un volumineux rapport de plus de 1700 pages dont la rédaction a été dirigée par J. P. Friend et H. W. Feely (Hasp 1961) /F6/.

L'intérêt des mesures effectuées en avion réside dans le fait que les prélèvements peuvent être faits dans de bonnes conditions matérielles, à une altitude constante et bien déterminée, pen-

dant un temps connu, ce qui facilite la détermination du volume d'air filtré, et au moyen d'installations dont le poids peut être élevé, c'est-à-dire l'efficacité de collection importante. L'avion peut emporter à son bord des instruments de prélèvements du type de ceux que nous avons décrits dans la Deuxième Partie. Il peut aussi utiliser sa vitesse relative par rapport à l'atmosphère pour faire passer un courant d'air à grande vitesse à travers des filtres placés convenablement. Notons toutefois que la vitesse de ce courant d'air peut difficilement être du même ordre de grandeur que la vitesse relative de l'avion, par suite des propriétés des surfaces filtrantes. Les volumes prélevés par cette méthode pourront néanmoins être considérables, grâce à la grande surface des filtres utilisés (500 et 1 250 cm² dans le cas du Hasp, permettant des filtrations de plus de 4 000 m³ par filtre).

La difficulté de ces prélèvements en avion vient de la turbulence atmosphérique provoquée par l'avion, et de l'extrême difficulté d'apprécier le volume d'air filtré. Dans le cas du Hasp, des études très longues et complètes utilisant notamment en cours de prélèvement de nombreuses mesures de pression statique et dynamique, et une étude aérodynamique préalable approfondie, ont permis une excellente détermination de ce paramètre, encore que des corrections de dernière heure aient dû y être apportées. Ceci permet aux auteurs de ce dernier travail d'estimer à $\pm 20\%$ l'erreur globale sur les concentrations indiquées (compte tenu des erreurs introduites par les traitements radiochimiques et la mesure d'activité du prélèvement) /F6, page 90/. Cette précision est tout à fait exceptionnelle dans le cas de prélèvements à haute altitude.

Une autre difficulté des prélèvements par avion réside dans le fait que l'altitude des prélèvements est limitée par les performances de l'avion. Là aussi, les auteurs du Hasp ont été favorisés par l'emploi d'appareils Lockheed U-2 dont le plafond semble être de l'ordre de 71 000 pieds soit environ 22 km.

III - 1/2.3 - Une solution élégante et relativement économique pour emporter des appareils de collection à des altitudes élevées consiste à utiliser des ballons soit en caoutchouc dilatable, soit en matière plastique, de dimensions permettant la dilatation interne du gaz sustentateur. Cette technique a été utilisée également aux U. S. A. sous le nom de programme Ash-Can (Holland /H4/ /A4/) simultanément aux premières expériences françaises (C. Jehanno - J. Labeyrie - 1959) /J6/. Un autre avantage de cette technique est que le ballon étant en équilibre dans l'atmosphère (compte tenu des vitesses de déplacement vertical, qui sont toujours faibles : limitées à 300 ou 400 mètres par minutes) ; ceci permet d'effectuer les prélèvements en air calme.

Toutefois l'emploi de cette technique exige plusieurs conditions :

- a) un matériel léger et entièrement automatique,
- b) des moyens de poursuite de l'équipage et de récupération du matériel de prélèvements,
- c) des conditions météorologiques permettant le gonflage et le lancement de ballons volumineux, et des conditions de poursuite acceptables (vitesse du vent pas trop élevée).

C'est cette technique que nous avons utilisée et que nous allons décrire ici.

III - 1/3 - TECHNIQUE STANDARD DE COLLECTION DES AEROSOLS EN HAUTE ALTITUDE PAR BALLONS

III - 1/3.1 - Le compresseur utilisé (figure 1) est constitué par une petite turbine type "aspirateurs ménagers", entraînée par un moteur universel dont la tension nominale de fonctionnement est 24 Volts. En fait, les faibles pressions régnant à l'altitude du prélèvement obligent, pour éviter l'emballement du moteur, à le sous-volter. La tension de fonctionnement adoptée sera donc de 17,5 Volts.

Ce compresseur est couplé à un porte filtre sur lequel on place un filtre de 100 cm², analogue à ceux utilisés habituellement.

Les batteries d'accumulateur ont été choisies en raison de leur bon coefficient énergie/poids. Ce sont des accumulateurs Andyard, à l'Argent-Zinc. Toutefois, leur bon fonctionnement exige de les pressuriser et de les protéger du froid par un blindage thermique (réalisé en polystyrène expansé) (figure 2). L'ensemble compresseur plus batteries, en état de marche, pèse 6,5 kg et permet d'effectuer un prélèvement pendant deux heures environ.

III - 1/3.2 - Mesure du débit de l'aspirateur /D2/

La perte de charge introduite par le filtre et les différentes canalisations d'air, ainsi que le rendement de la turbine varient de façon complexe en fonction de la pression atmosphérique. Le

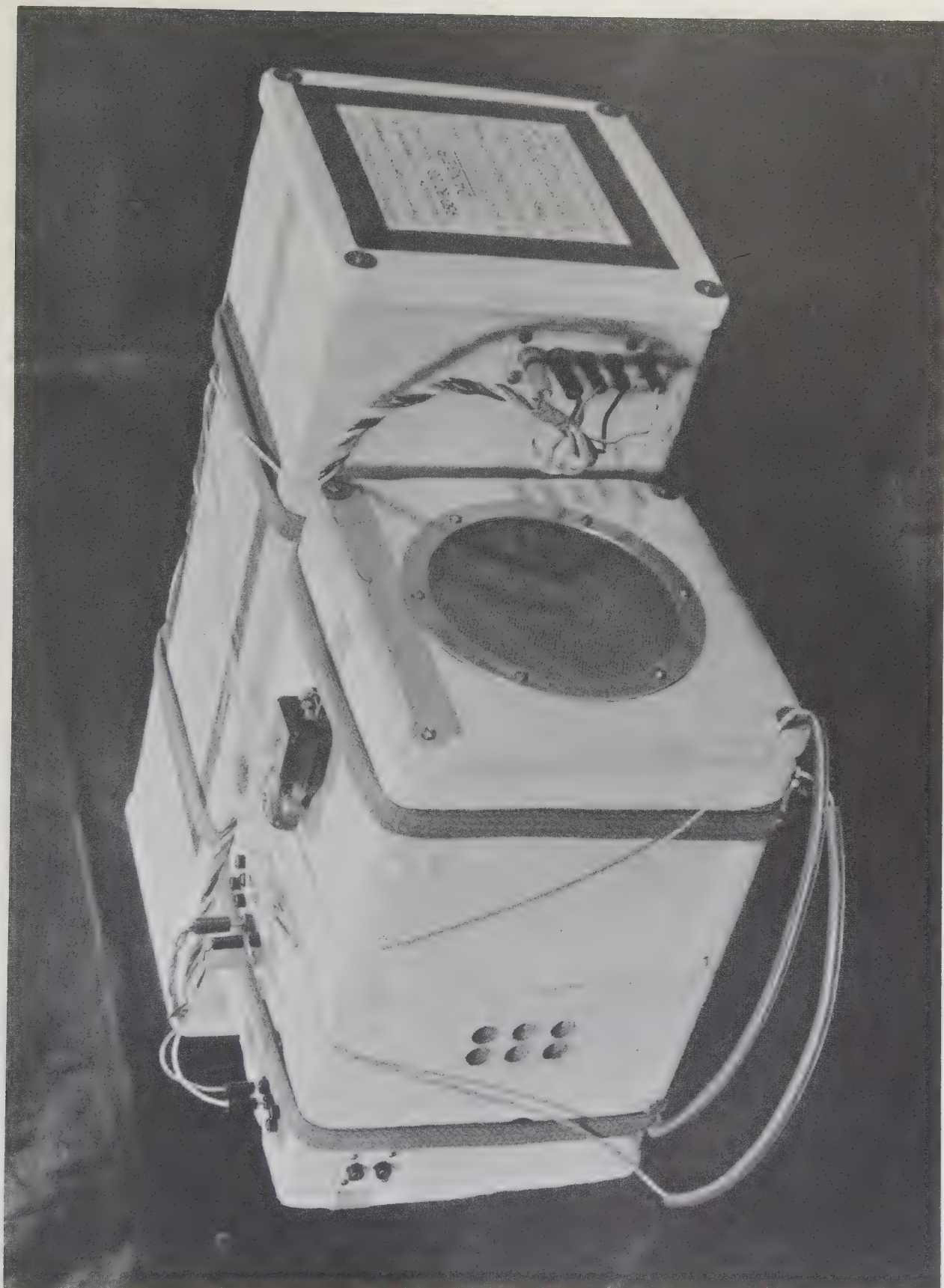


Figure 1/III. 1 - Aspirateur stratosphérique standard (mono voie).

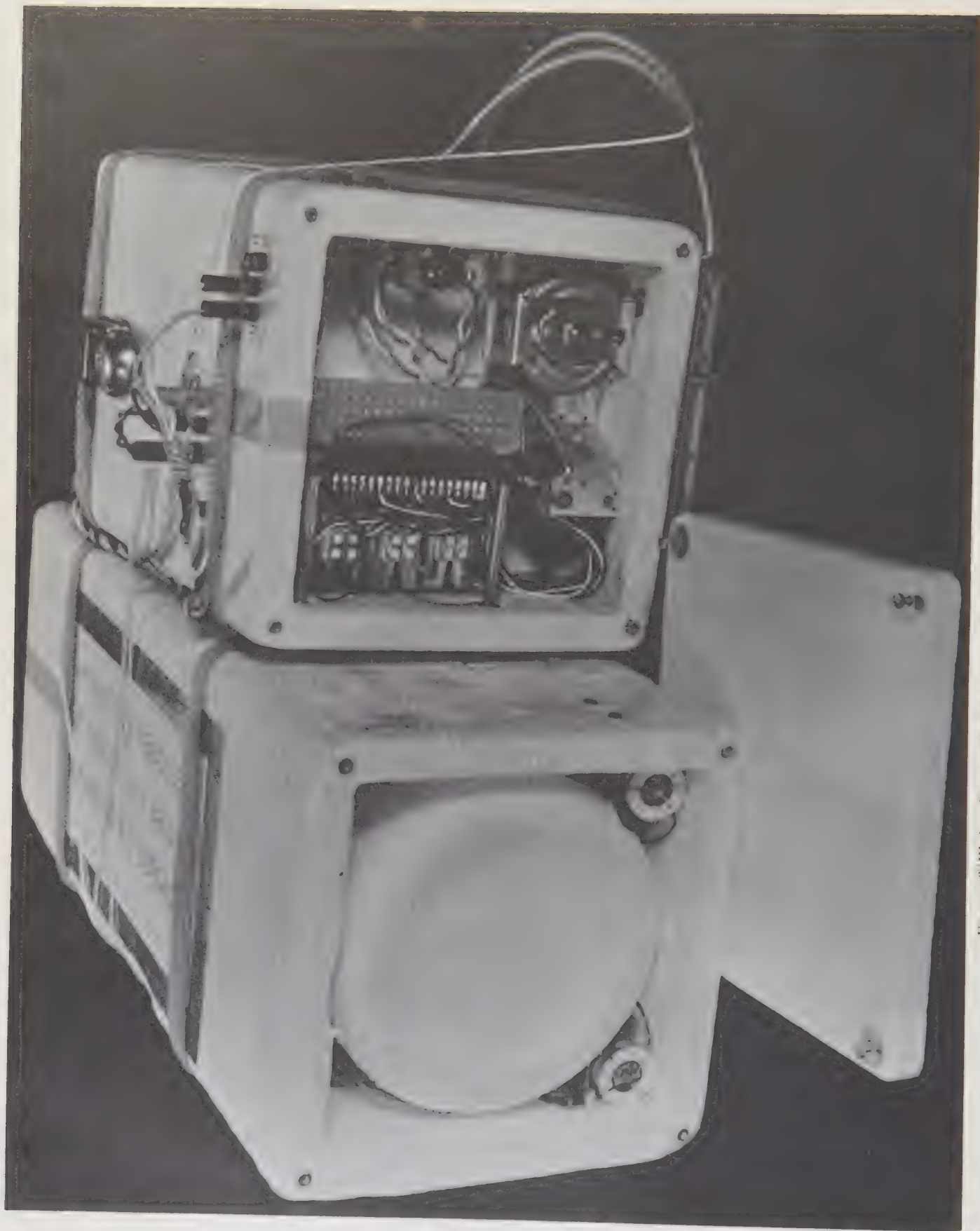


Figure 2/III.1 - Dispositif programmeur et protection thermique des batteries.

problème théorique est compliqué encore par le fait que la tension d'alimentation du moteur est constante, ce qui produit une accélération de la vitesse de rotation de la turbine, au fur et à mesure de la diminution de pression.

Un raisonnement énergétique tend à montrer que le débit volumique doit finalement peu varier en fonction de la pression, aux pertes par frottements près.

La description et les résultats de cette mesure sont données en annexe 4.

III - 1/3.3 - Mesure du rendement de filtration /D2/

Par rapport aux mesures effectuées au niveau du sol, le rendement de filtration peut être altéré par deux phénomènes principaux :

1/ La diminution de la pression atmosphérique qui augmente le libre parcours moyen peu accroître le rendement de collection du filtre vis-à-vis des aérosols les plus fins ($\# 0,1 \mu$).

2/ La rareté des poussières à haute altitude et le faible volume d'air filtré, font que le rendement de collection reste pendant tout le prélèvement égal à celui du filtre *strictement* vierge.

Les mesures du rendement des filtres et les résultats obtenus sont indiqués annexe 5.

III - 1/3.4 - Description d'une expérience.

Le but d'une expérience de prélèvement consiste à mesurer la concentration des aérosols radio-actifs artificiels à une altitude bien déterminée. L'absence, ou l'imprécision, des dispositifs permettant le plafonnement à altitude constante des ballons utilisés nous conduit à faire porter l'appareillage par un ballon juste un peu plus gonflé que ne l'exigerait l'équilibre statique. De cette façon la vitesse ascensionnelle sera très réduite (inférieure à 100 m/minute). Si la tranche d'atmosphère explorée est à haute altitude, l'expérience risque de durer longtemps, ce qui permet au ballon de s'éloigner de façon considérable. Aussi, jusqu'à l'altitude du début du prélèvement, un ballon "tracteur" fournit un supplément de force ascensionnelle, permettant d'augmenter la vitesse ascensionnelle qui peut atteindre 300 à 400 m/minute.

A l'altitude prévue, un "barocontacteur" déclenche un relais qui envoie du courant électrique dans une petite résistance entourant le fil de nylon auquel est accroché le ballon tracteur. Un blindage thermique sommaire réduit les pertes de chaleur, le nylon fond en quelques secondes et le ballon tracteur est décroché. L'ascension se poursuit alors à vitesse lente. A l'altitude maximale prévue, un dispositif semblable détachera du ballon porteur l'appareillage qui redescend alors en parachute.

L'attelage de deux ballons ensemble exige de disposer le ballon inférieur axialement le long d'un câble qui le traverse de part en part. L'action de ce ballon s'exerce par le col inférieur. Le col supérieur coulisse le long du câble, vers le haut, au fur et à mesure de la dilatation du ballon. La faible surpression d'hydrogène (environ 2 g/cm²) rend aisés les problèmes d'étanchéité du ballon. En fait, le montage est plus compliqué car la rupture du câble de nylon entre le ballon porteur et le ballon tracteur provoquerait la chute de l'extrémité rendue libre, sur le ballon inférieur, très distendu par sa dilatation et fragilisé par le froid. Un système de coulisse permet de détacher le ballon tracteur en dessous du ballon porteur (figure 3).

Les ballons utilisés ont été des ballons "Delacoste", en latex pur, et des ballons américains du type "Darex", fabriqués en Neoprène par "Dewey and Almy", dont les performances sont supérieures et plus régulières, mais qui sont bien plus fragiles.

En plus des ballons, de la charge, et du parachute, l'équipage comprend également un réflecteur radar qui permet d'effectuer sa poursuite (figure 4). Le radar, de type Cotal puis Super Cotal était manié par M. Barbé et ses collaborateurs de la Météorologie Nationale. Cette poursuite permet de vérifier si l'équipage monte bien à l'altitude voulue. De plus, la durée du prélèvement est ainsi déterminée avec exactitude par les modifications de la courbe ascensionnelle, comme on le voit sur le graphique indiquant les altitudes en fonction du temps (figure 5). La connaissance du débit de l'aspirateur permet alors de calculer le volume d'air qui a été filtré. Enfin, les indications du radar, au cours de la descente permettent de déterminer le point probable de chute à quelques kilomètres près.

Le point exact de chute peut être retrouvé sans difficultés exagérées, sur le terrain, grâce à un ballon repère, qui est attaché au bout d'une cordelette légère de 100 mètres de long, et qui est visible, au dessus de l'horizon, à plusieurs kilomètres de distance. Ce ballon doit être peu gonflé,

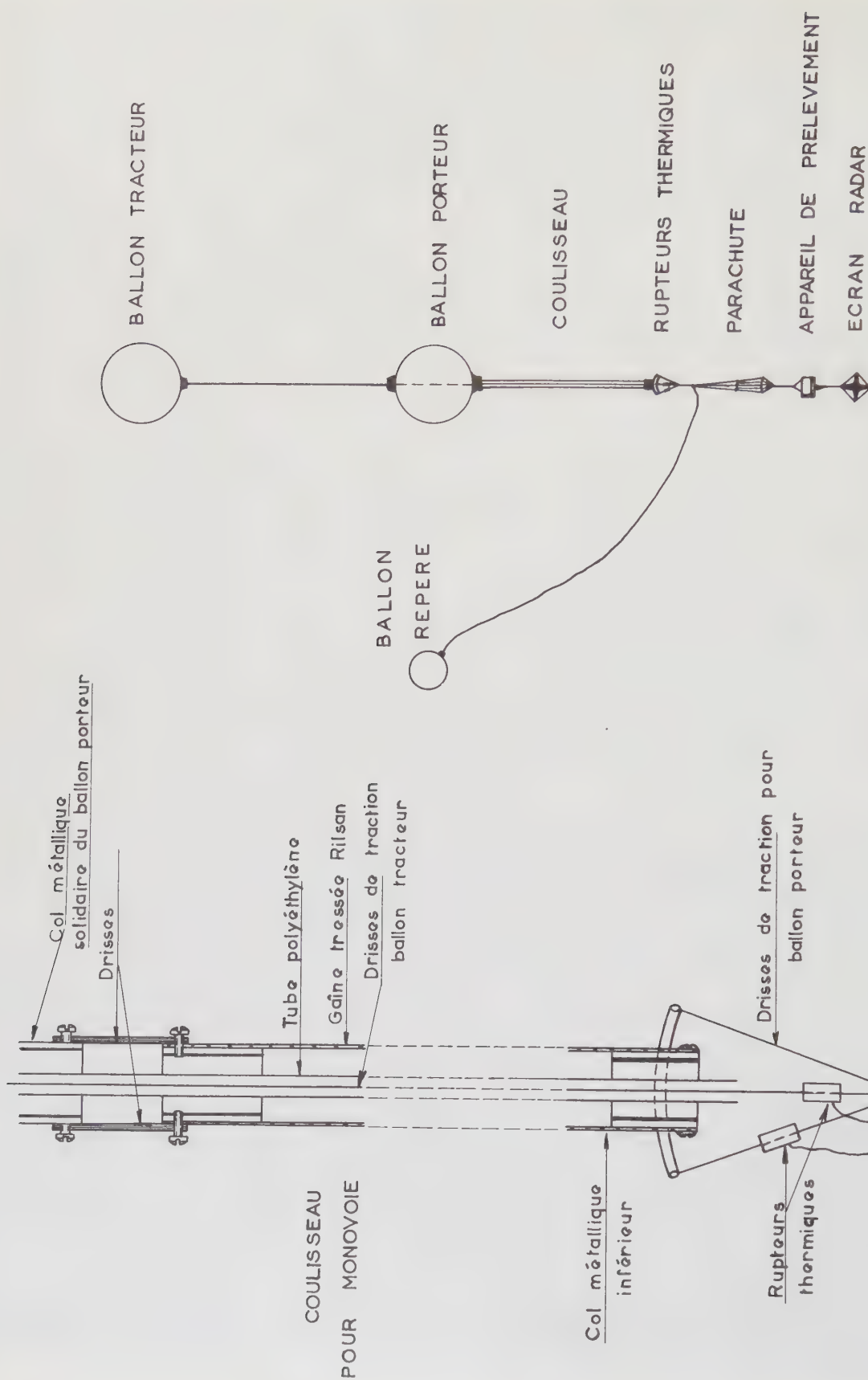


Fig. 4/III. 1

Fig. 3/III. 1 -

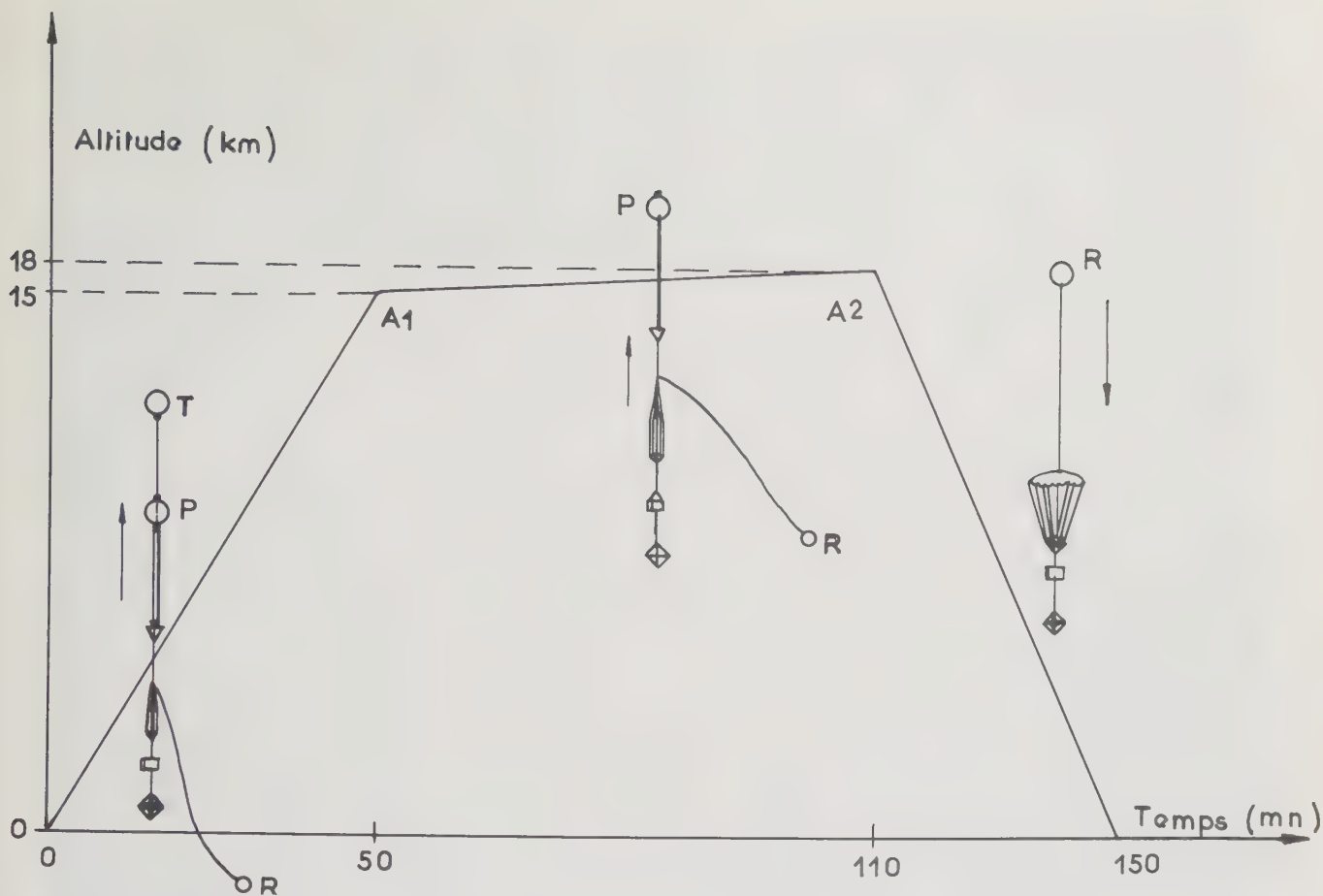


Fig. 5/III.1 - Exemple de diagramme des altitudes.

de façon à diminuer ses risques d'éclatement. De plus, sa force ascensionnelle presque nulle fait que durant toute la montée de l'équipage, il se trouve tiré, et largement en dessous des autres constituants, ce qui élimine les risques de collision. Au moment de la chute de l'appareillage, il se retrouve au-dessus du parachute.

Grâce à la densité élevée de la population dans la région parisienne, et à sa compréhension, ainsi qu'au concours de la Gendarmerie Nationale, la plupart des appareils nous ont été signalés dans l'heure qui suivait leur chute. Les autres ont tous été retrouvés, grâce à la précision des pointés radar, au ballon repère, aux efforts des équipages de recherches... et à la chance. La distance horizontale parcourue par l'appareillage, au cours des deux à trois heures de vol, atteignait en général 50 à 150 km. Mais dans certains cas elle a été supérieure à 300 km.

Après sa récupération, le filtre était mesuré de façon analogue à celle que nous avons indiquée dans la Deuxième Partie, mais avec un soin tout particulier.

III - 1/4 - DISPOSITIFS COLLECTEURS A SIX VOIES DE PRELEVEMENTS

Le principal inconvénient du système précédent est de ne fournir qu'un seul point de mesure par expérience. L'étude de la répartition verticale des aérosols radioactifs artificiels exige ainsi plusieurs vols, d'où multiplications des risques de perte ou d'incident. De plus, l'attelage des ballons tels que nous l'avons décrit est délicat et ne peut être réalisé que par vent très faible.

Ainsi, dès le début des prélèvements Boclet a conçu un appareil, perfectionné par David /D2/, et permettant, en fonction de l'altitude, d'aspirer l'air à travers une partie seulement d'un filtre de grandes dimensions (figure 6). La partie du filtre utilisée change à une altitude prédéterminée. La réalisation mécanique consiste à déplacer un orifice en face de compartiments étanches, à la surface desquels est disposé le filtre. Les deux appareils réalisés successivement comportaient chacun six positions différentes. La rotation de l'orifice est commandée par barocontacteurs et relais, donc se produit automatiquement à l'altitude prévue. Une difficulté consiste à éviter soigneusement les fuites entre compartiments, ce qui s'est avéré très difficile.

L'étude du débit a été effectuée de la même manière que précédemment et les résultats en sont indiqués figure 3 de l'annexe 4.

Les appareils de ce type pesaient respectivement 9 kg et 8,2 kg. Vu leur poids, deux ballons doivent être accouplés pour leur permettre d'atteindre les altitudes supérieures à 30 km.

Ces dispositifs permettent bien de tracer la coupe verticale de l'atmosphère, par tranches de 5 à 10 km. Les prélèvements peuvent être effectués pendant la descente, ce qui permet de vérifier les résultats obtenus sur les autres parties du filtre, pendant la montée. L'utilisation de cet appareil est néanmoins réservée en principe aux périodes de forte radioactivité, les volumes d'air pompés restant toujours faibles.

III - 1/5 - COLLECTION MASSIVE DES POUSSIÈRES STRATOSPHERIQUES SUR GAZE

Nous avons vu que la collection dans la stratosphère des aérosols et poussières de toutes origines pose de difficiles problèmes technologiques, dès que l'on cherche à filtrer d'importants volumes d'air.

Diverses expériences au sol ont attiré notre attention sur les propriétés de la gaze de coton que nous utilisons dans le collecteur de retombées radioactives appelé Crapal (cf. § IV. 2/2), et dont le rendement de collection semble excellent, même après lavage par la pluie. En particulier, des gazes de coton disposées verticalement et traversées par des vents faibles de quelques mètres par seconde se sont révélées, par comparaison avec les appareils habituels et compte tenu de la vitesse moyenne du vent pendant le prélèvement, avoir collecté d'importantes quantités de produits de fission avec un rendement évalué à quelques pour cent.

Remarquons qu'au cours du vol, le ballon et sa charge parcourent une distance verticale de l'ordre de 60 km. Une surface de 1 m², traversée naturellement par l'air tout en retenant une partie non négligeable des aérosols en suspension, filtrerait par conséquent, sans dépense énergétique supplémentaire, des volumes d'air de plusieurs milliers de m³. Une telle surface réalise ainsi un filtre de mauvais rendement, certes, mais de pertes de charge quasiment nulle.

Des expériences ont donc été entreprises au moyen de gaze tendue sur un cadre, et accrochée à un ballon, suivant les procédés précédemment décrits /D1/. Le cadre qui supporte la gaze est entouré de cerceaux destinés à empêcher la gaze de se contaminer sur le sol, après atterrissage (figures 7, 8 et 9). Les résultats obtenus ont été encourageants et ont confirmé que le rendement de collection de la gaze était voisin de 5 %. Les mesures sont effectuées par spectrométrie γ , sans traitement, et par comptage global, après calcination de la gaze. Les quantités de radioactivité collectée étaient importantes : de 7 000 à 60 000 pCi/m² de gaze.

Pour permettre l'évaluation plus précise du rendement, l'expérience suivante a été réalisée :

Des cadres de gaze respectivement de 2,45 m² et 0,61 m², protégés par des cerceaux, comme précédemment et pesant respectivement 1,6 kg et 0,6 kg ont été accrochés sous un ballon sonde en même temps qu'un aspirateur standard.

* 4 000 g Beritex

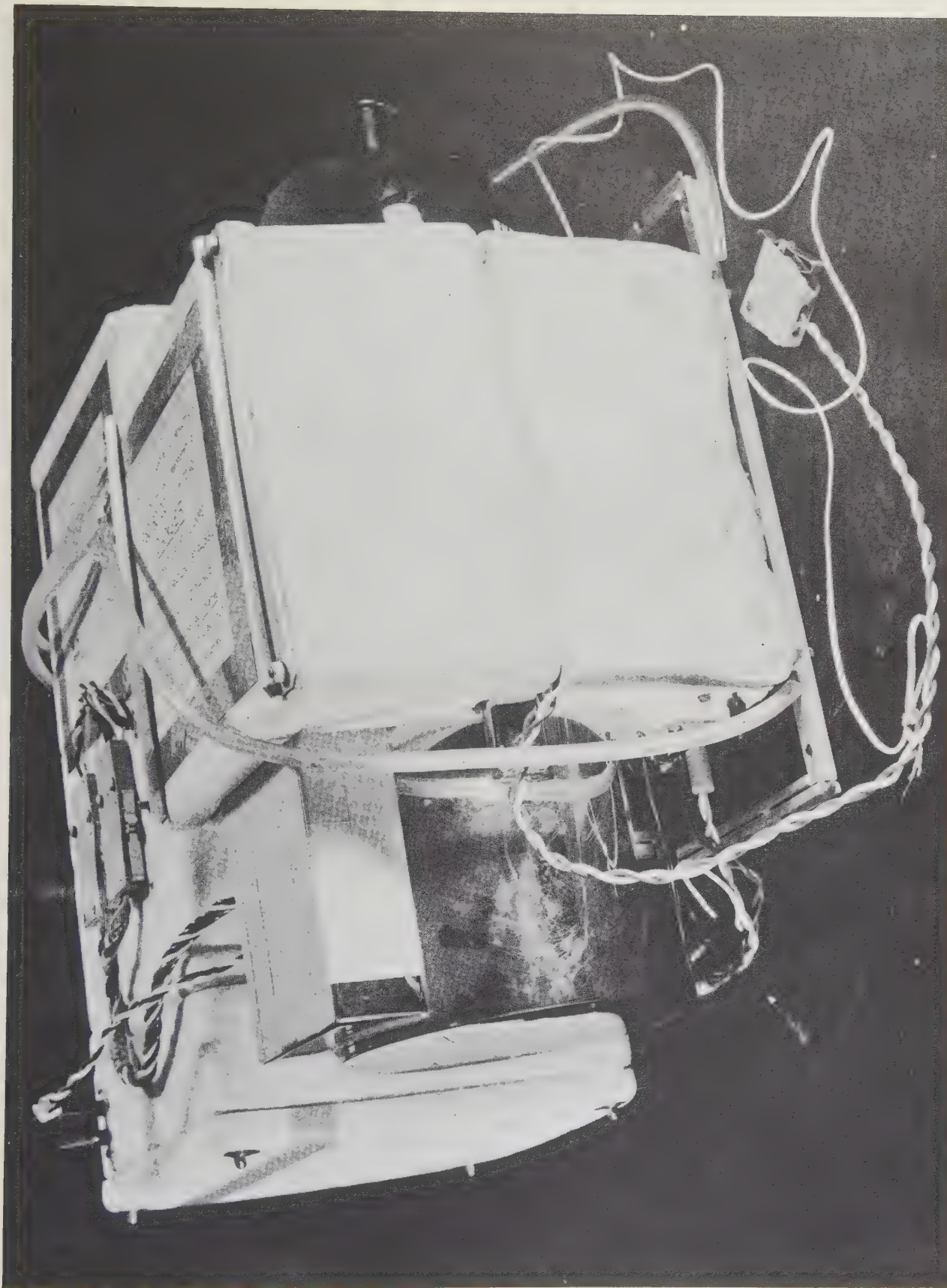


Figure 6/III. 1 - Aspirateur stratosphérique (6 voies).

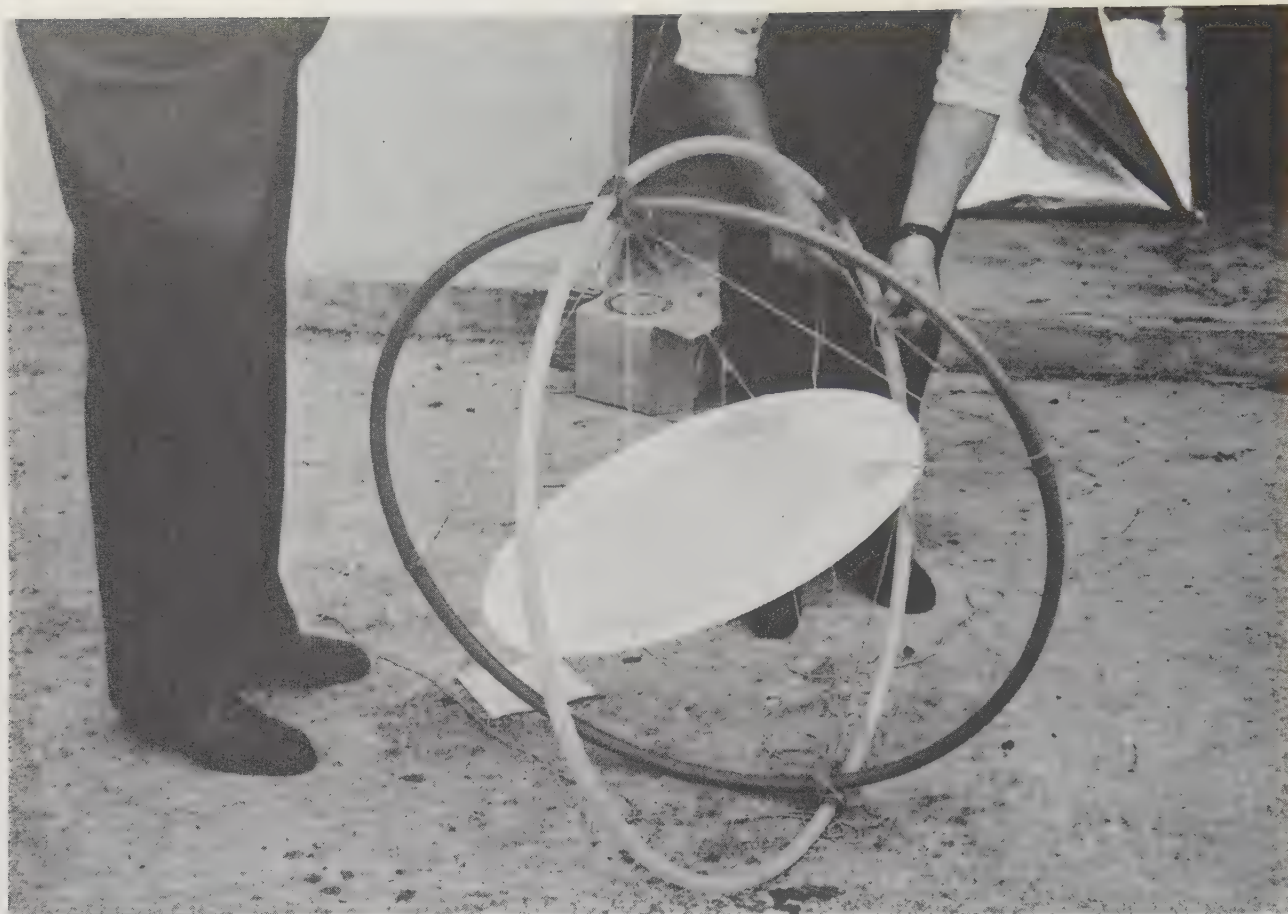


Figure 7/III. 1

Compte tenu du parachute et du réflecteur radar, la charge totale était de 14 kg. Les détails de l'expérience sont indiqués annexe 6.

Nous voyons ainsi qu'il est possible de construire des ensembles filtrant de grande surface, de l'ordre de 1 à 10 m² ou plus, assez légers pour être emmenés à haute altitude (30 à 35 km) par des ballons sondes de petites dimensions, et présentant une perte de charge assez faible pour que leur mouvement d'ascension ou de chute leur fasse balayer un volume d'air se chiffant par centaines de milliers de mètres cubes. Leur rendement de collection est indépendant de la surface et de l'ordre de 3 à 4 %, vis-à-vis des aérosols radioactifs artificiels, c'est-à-dire de poussières de dimensions inférieures ou égales au micron. Ce dispositif a été largement utilisé par la suite. Pour obtenir une coupe verticale de la concentration des aérosols radioactifs dans l'atmosphère, on a utilisé plusieurs de ces dispositifs simultanément, réglés pour ne pas dépasser des altitudes respectives de 10, 20 et 30 km, par exemple. Par soustraction on peut avoir ainsi la concentration moyenne des aérosols dans une tranche d'épaisseur déterminée.



Figure 8/III. 1



Figure 9/III. 1 - Collecteur à gaze en vol.

CHAPITRE III. 2

RESULTATS DES MESURES DE CONCENTRATION DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS DANS LA HAUTE ATMOSPHERE

III - 2/1 - PRECISION ET VALIDITE DES RESULTATS

III - 2/1.1 - Tout ce que nous avons dit au chapitre II - 2 sur les causes d'erreur dans la mesure de la radioactivité β globale des aérosols demeure vrai ici : les incertitudes sur le rendement de filtration, le débit, le rendement de comptage, que nous avons signalées demeurent inchangées. A cela s'ajoutent les incertitudes sur l'altitude du prélèvement, sur sa durée, et les erreurs statistiques de comptage dues aux faibles activités collectées. Enfin, les volumes d'air filtrés sont de l'ordre de quelques m^3 à quelques dizaines de m^3 *, ce qui ne peut pas être considéré comme une représentation satisfaisante de l'atmosphère autour du point de prélèvement.

Il est difficile d'apprécier la contribution de toutes ces sources d'erreurs : toutefois, l'étude des résultats que nous présentons ci-dessous nous indique que la reproductibilité des mesures est de l'ordre d'un facteur 3. Ce résultat empirique représente l'ensemble des causes de variations et il paraît correspondre également à la précision absolue des résultats indiqués.

Dans le cas des prélèvements sur gaze de large surface, les résultats sont certainement bien meilleurs : l'importance du volume d'air filtré et la détermination précise, grâce au radar, de l'altitude maximale éliminent pratiquement les erreurs statistiques de comptage, ainsi que les erreurs d'appréciation et de représentabilité du volume d'air filtré. Seul le rendement de collection paraît susceptible de varier. On se trouve donc ramené, à peu de choses près, au cas des mesures au niveau du sol, ce qui nous conduit à adopter les valeurs de $\pm 40 \%$, pour la reproductibilité et un facteur 2 pour la valeur absolue des mesures.

III - 2/1.2 - Contrairement au cas des mesures effectuées au niveau du sol, les recoupements avec d'autres mesures publiées dans la littérature sont difficiles. Nous avons indiqué au chapitre précédent les deux grandes séries de résultats actuellement publiés, concernant les projets Hasp (Hasp 1961) et Ash-Can (Hals 115, 1961 et suivants). Les comparaisons entre ces projets et nos propres résultats sont très difficiles, les prélèvements étant effectués de manière totalement différente :

- prélèvement en avions, dans le cas du Hasp, ce qui permet de traverser horizontalement une masse d'air très étendue,
- prélèvement en ballon plafonnant, dans le cas du projet Ash-Can, ce qui donne un bon échantillonnage d'une masse d'air très limitée,
- prélèvement en ballon ascendant ou descendant, dans notre cas, ce qui intéresse par conséquent une masse d'air d'étendue limitée horizontalement, mais permet d'intégrer les petites fluctuations verticales à l'intérieur d'une couche de 5 à 10 km d'épaisseur.

Une intercomparaison de ces deux premières séries de mesures a été tentée par K. Telegadas (1961 / T4/) au moyen d'une série de prélèvements simultanés et conduit à des fluctuations de $- 52 \%$ à $+ 35 \%$ en ce qui concerne les évaluations de strontium 90 du Hasp par rapport à ceux du projet Ash-Can. Les résultats relatifs aux mesures β globales n'ont pas été publiés mais sont certainement sensiblement plus éloignés. Nous avons nous-mêmes comparé les résultats de ces deux projets, relatifs au mois de Janvier 1960 (c'est-à-dire pendant une période exempte d'explosions depuis

* Sauf dans le cas des prélèvements sur gaze.

14 mois). Cette comparaison est indiquée figures 1 et 2. On note à plusieurs reprises des fluctuations atteignant un facteur 10, dans le cas des mesures β globales, et 4 dans le cas des mesures de strontium 90, pour des lieux de prélèvements voisins. L'allure générale même des courbes obtenues par chaque méthode est sensiblement différente. Enfin, les fluctuations enregistrées, par une méthode donnée, d'un jour à l'autre, sont importantes et atteignent des facteurs 2 à 6 dans le cas des projets Ash-Can, et 2,5 dans le cas du Hasp (pour une précision indiquée de $\pm 20\%$).

Nous devons en conclure que même au cours d'une période aussi calme que le mois de Janvier 1960 (nucléairement et météorologiquement parlant) les fluctuations de concentration observées sont très importantes, ce qui rend difficile la comparabilité des résultats rares et discrets obtenus par les différents programmes de mesures en haute altitude. Cette observation générale avait été faite par L. Machta (1961) /M2/ et l'avait incité à n'utiliser, pour caractériser l'évolution des concentrations à différentes altitudes, que des valeurs moyennes établies sur des périodes de trois mois.

La comparaison avec nos propres résultats est bien plus difficile à faire, car ceux-ci ont été obtenus dans une zone de latitude où peu de mesures ont été effectuées et publiées. De plus, les altitudes de prélèvement sont rarement les mêmes. Toutefois, sur les figures 3, 4 et 6, nous avons fait figurer en plus de nos résultats ceux obtenus par le Hasp et le projet Ash-Can dans les régions les plus voisines. On constate que dans l'ensemble les ordres de grandeur indiqués sont les mêmes, et les courbes obtenues voisines, ou complémentaires.

A partir de Juin 1961, seuls sont publiés les résultats relatifs à des radionuclides déterminés, ce qui interdit les comparaisons directes.

III - 2/2 - REPARTITION VERTICALE DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS AU DESSUS DE LA REGION PARISIENNE

III - 2/2, 1 - Un tableau général des résultats obtenus entre Mai 1959 et Octobre 1962 est ajouté en appendice. Les concentrations qui y figurent sont indiquées par rapport à l'unité de volume à l'altitude du prélèvement, et par unité de volume aux conditions normales.

Si l'on admet que la pression atmosphérique p varie avec l'altitude h suivant la loi

$$p = p_0 e^{-Kh} \quad (1)$$

où K est une constante qui vaut environ $1,35 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$, et si d'autre part la vitesse ascensionnelle et le débit volumique des appareils de prélèvement sont constants, on a entre ces valeurs la relation :

$$a' = a K p_0 \frac{h_2 - h_1}{p_1 - p_2} \quad (2)$$

où a' = activité par unité de volume ramené aux conditions normales,

a = activité par unité de volume à l'altitude du prélèvement,

$K = 1,35 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$

h_1, h_2 = altitude de début et de fin de prélèvement (en mètres)

p_0, p_1, p_2 = pression atmosphérique aux niveaux 0, h_1 et h_2 .

Si nous exprimons les pressions en millibars et les différences d'altitude en kilomètres, nous avons alors :

$$a' = 137 \frac{h_2 - h_1}{p_1 - p_2} a$$

Les résultats qui figurent dans ce tableau sont ceux pour lesquels tous les risques d'un mauvais fonctionnement de l'appareillage utilisé ont pu être éliminés, ainsi que les risques de contamination après la chute du matériel. De nombreuses autres mesures ont été effectuées, mais leur validité n'est pas certaine.

III - 2/2, 2 - Répartition dans la troposphère.

La majeure partie des mesures relatives à la troposphère et à la basse stratosphère ont été faites au printemps 1959. Les différents résultats, représentés figure 3, indiquent pour cette zone

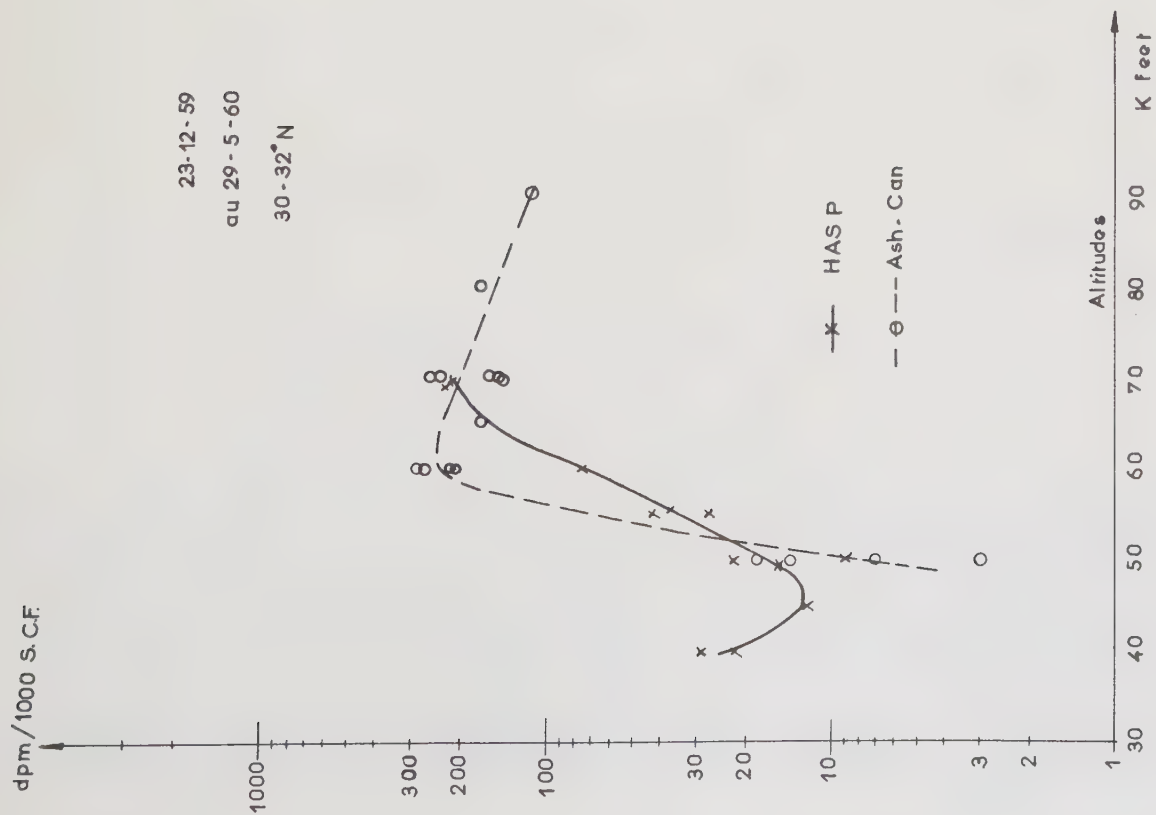


Fig. 1/III.2 - Radioactivité β globale par unité de volume T. P. N.

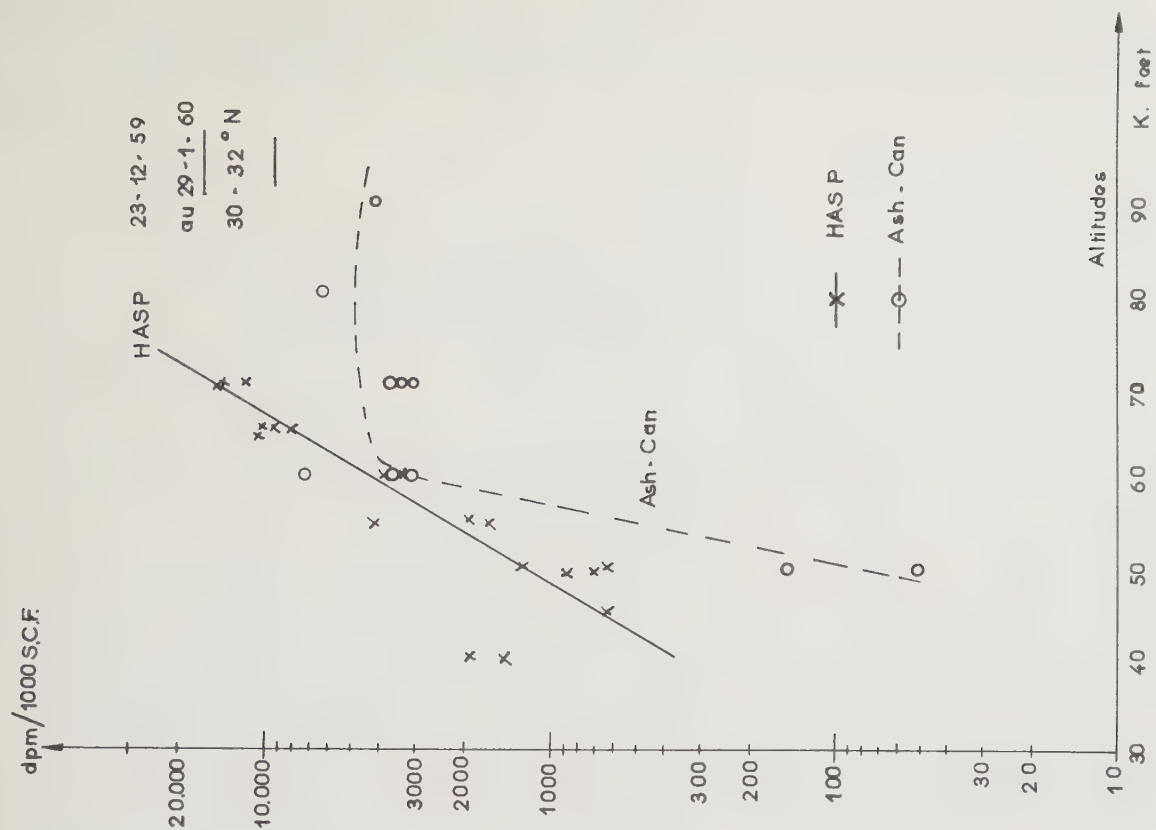


Fig. 2/III.2 - Concentration du strontium 90 par unité de volume T. P. N.

une concentration des aérosols croissant exponentiellement avec l'altitude entre 1 et 14 km. Ces résultats recoupent bien ceux qui ont été obtenus par le HASP et qui laissent entrevoir une concentration par unité de volume local constante ou légèrement décroissante au delà de 15 km.

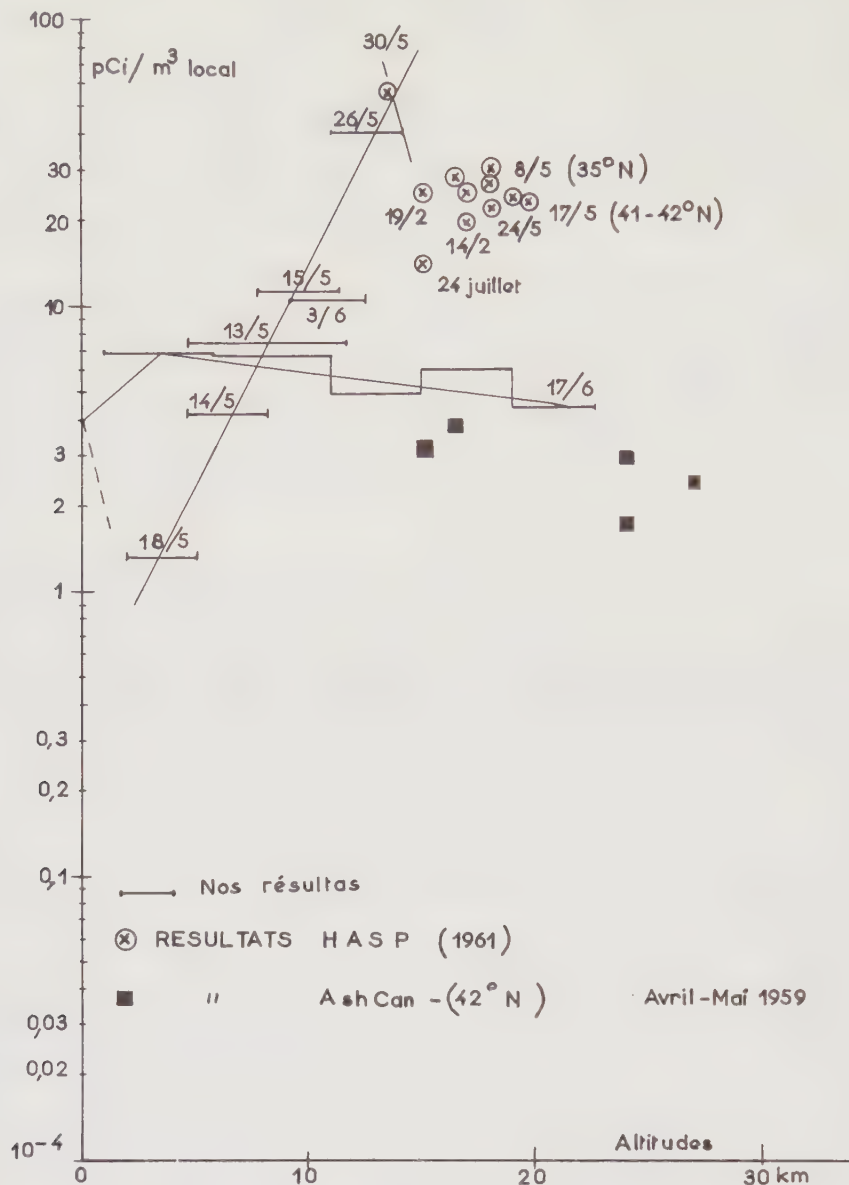


Fig. 3/III, 2 - Radioactivité β globale par unité de volume local. Printemps 1959.

Cette structure est bien conforme au schéma que nous avons proposé dans le chapitre II - 4, à savoir une alimentation de la troposphère à partir d'un réservoir stratosphérique, jointe à un nettoyage homogène de la troposphère donc de plus en plus efficace, au fur et à mesure qu'on se rapproche du sol. Ainsi le maximum du printemps 1959 serait bien le résultat d'une injection dans la troposphère particulièrement intense, de débris jusqu'alors stratosphériques. Toutefois, notons que les concentrations observées au niveau du sol à la même époque sont plus élevées que vers 1 ou 2 km d'altitude, ce qui pourrait correspondre à l'arrivée troposphérique de produits injectés ailleurs (dans la basse atmosphère arctique par exemple, ainsi que cela a été suggéré).

Les mesures effectuées en Mars 1960 (figure 4) et Septembre 1960 (figure 5), confirment ces premières conclusions : en particulier l'absence de remontée des concentrations au voisinage immédiat du sol limite cette fois l'arrivée des aérosols radioactifs à un phénomène de transfert stratosphère-troposphère.

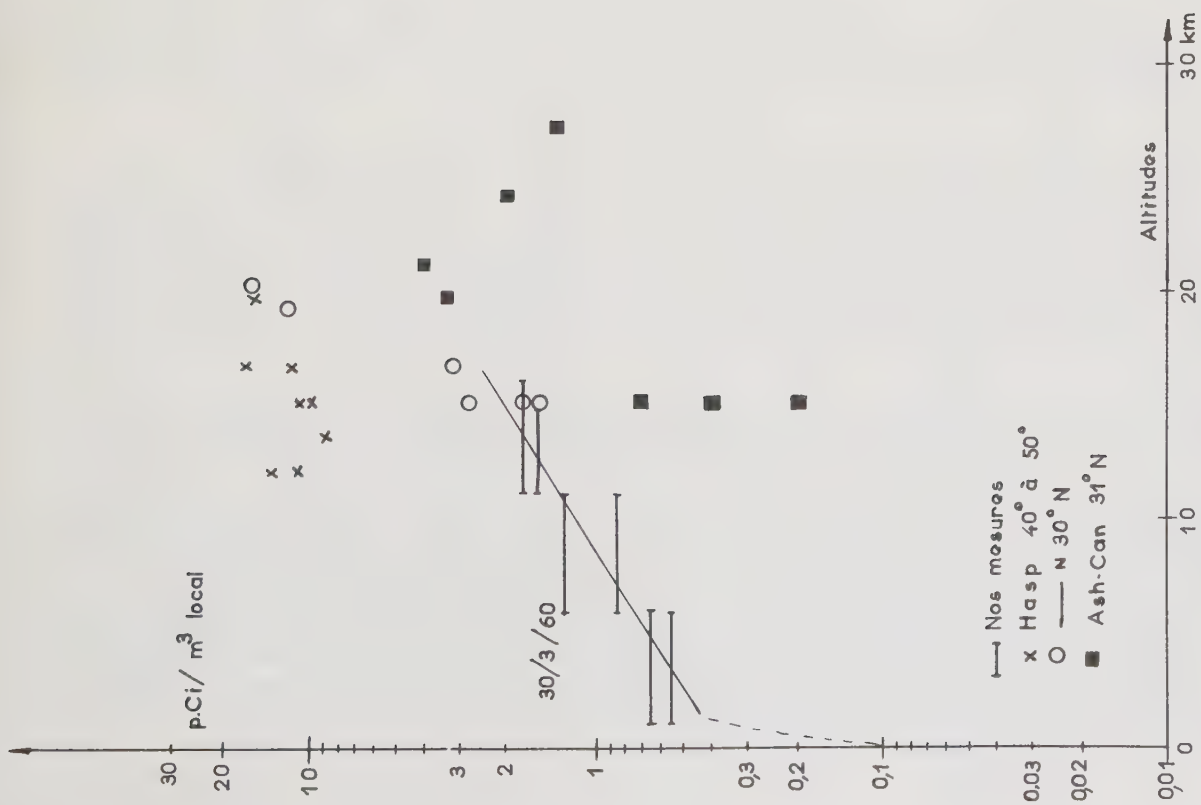


Fig. 4/III.2 - Radioactivité β globale par unité de volume local, Mars 1960.

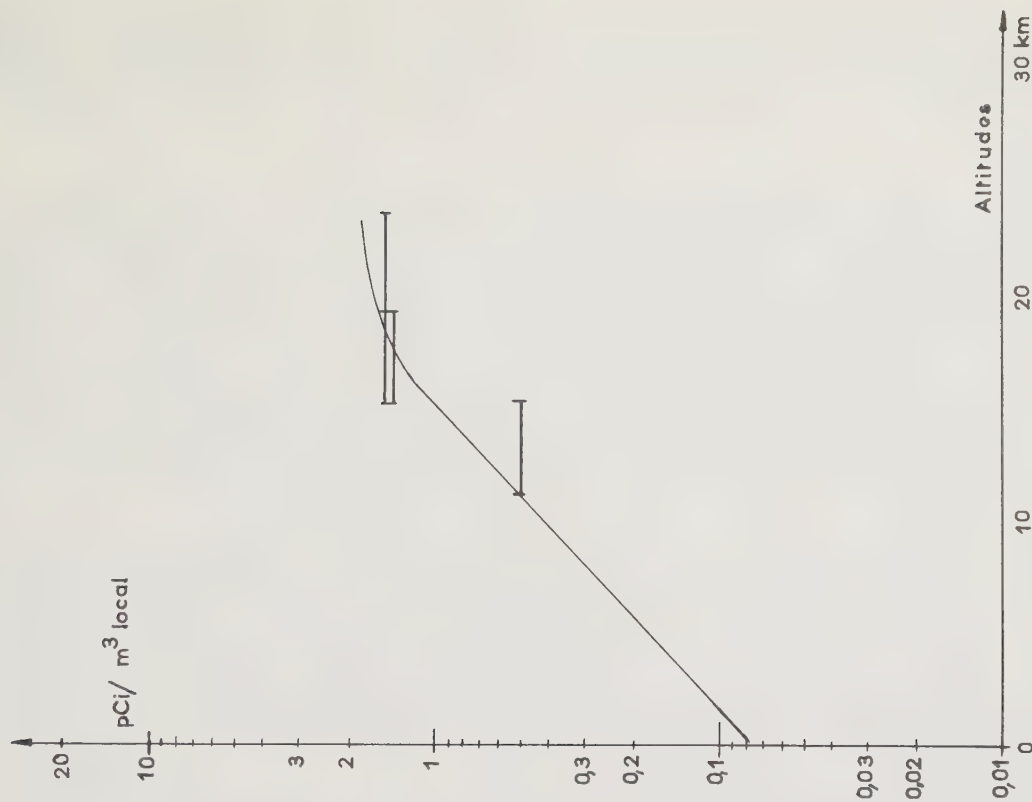


Fig. 5/III.2 - Radioactivité β globale par unité de volume local, 14-9-1960.

La mesure effectuée le 17 Juin, représentée également figure 3, correspond à une répartition fondamentalement différente des aérosols dont la concentration volumique apparaît constante entre le sol et 25 km d'altitude. On est peut être là en présence d'une descente brusque d'air stratosphérique, telle que nous les avons envisagées au chapitre II - 4, mais ceci reste une simple hypothèse.

III - 2/2.3 - Répartition dans la stratosphère en 1960-1961.

La figure 6 montre qu'à partir d'une altitude comprise entre 15 et 25 km, l'augmentation exponentielle de concentration volumique avec l'altitude fait place à une décroissance lente. L'effet est évidemment différent si l'on considère les concentrations par unité de volume ramené aux conditions normales, ce que nous montrons figure 7. Il est remarquable que dans ce cas, aucune mesure effectuée avec notre technique de balayage vertical ne nous conduise à considérer que la concentration par unité de volume TPN passe par un maximum, puis redécroisse. Au contraire l'interprétation statistique de nombreuses mesures effectuées *horizontalement*, a conduit les auteurs des projets Hasp et Ash-Can à considérer que la concentration des aérosols radioactifs artificiels, par unité de volume aux conditions normales (et plus particulièrement du strontium 90), passait par un maximum net, quelques kilomètres au dessus de la tropopause, puis décroissait à nouveau comme nous l'indiquons sur la figure 8 extraite du rapport Hasp /F6, vol. 3, p. 240/.

Si nos mesures sont justes, cela signifie alors que le maximum ainsi observé est un effet statistique et non une propriété intrinsèque des aérosols stratosphériques, ce qui implique que le mouvement de descente des aérosols résulte de la turbulence de l'atmosphère et non d'un processus de décantation sous l'influence de la seule gravité. On s'explique alors que les concentrations observées puissent fluctuer dans de larges proportions, à une altitude donnée. D'ailleurs, cette conclusion semble être imposée par des considérations sensiblement différentes : les constantes de temps de nettoyage de la stratosphère calculées à partir de la répartition statistique indiquée figure 8, se sont révélées plus longues que celles que l'on pouvait déduire du taux de retombées (Hasp 1961).

En effet, le coefficient de mélange vertical déduit de cette répartition serait compris entre 10^3 et 10^4 $\text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$ alors que les études sur la répartition du tungstène 185 conduisent à des coefficients de mélange horizontal de 10^9 $\text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$, ce qui rendrait largement prépondérants les transferts horizontaux à travers les ruptures de tropopause, parmi les divers processus envisagés pour expliquer le passage des aérosols de la basse stratosphère à la troposphère. Et de fait ce temps de demi nettoyage (ou "temps de résidence") dans la stratosphère tropicale, calculé à partir de la répartition indiquée figure 8, serait de 4 à 5 ans, alors que les mesures du contenu de la stratosphère conduisent à des valeurs empiriques de l'ordre de 1 ou 2 ans pour la basse stratosphère tropicale (et 0,5 an pour la basse stratosphère polaire) /F6/.

III - 2/2.4 - Répartition dans la stratosphère de Septembre 1961 à Mars 1962.

Nous avons vu que la reprise des essais nucléaires à la fin Août 1961 s'était traduite par une augmentation brutale de la radioactivité β globale des aérosols, au niveau du sol, les 12 et 13 Septembre. Assez curieusement, le sondage effectué le 12 Septembre 1961 (figure 9) au-dessus de la région parisienne ne révèle pas d'augmentation sensible de concentration entre 10 et 20 km d'altitude. Par contre au delà de 25 km, la radioactivité par unité de volume local est 5 à 10 fois plus forte. Cette répartition se retrouve le 20 Septembre (figure 9) alors que la radioactivité au niveau du sol a crû de façon considérable.

L'absence de concentrations élevées de radioactivité dans la haute troposphère et la basse stratosphère démontre bien que les augmentations constatées au niveau du sol résultaient de processus de transport troposphériques à basse altitude, comme nous le signalions au § II - 4/5.1.

D'une façon générale, il semble que durant toute cette période les maxima de concentration se situent tous entre 25 et 30 km d'altitude, ou au delà (cf. figure 10), ce qui tranche de façon très nette avec les répartitions rencontrées auparavant et peut parfaitement expliquer les anomalies apparentes mises en évidence au niveau du sol ainsi que leur aspect paradoxal (voir § II - 4/5.1). En effet, l'injection des débris radioactifs se serait produite à si haute altitude que leur concentration dans la basse stratosphère serait restée en général trop faible pour que les échanges entre cette zone et la troposphère puissent influencer de façon notable sur les concentrations observées au niveau du sol ; ces dernières auraient donc résulté essentiellement de la circulation à basse altitude des débris troposphériques, ce qui a bien été constaté.

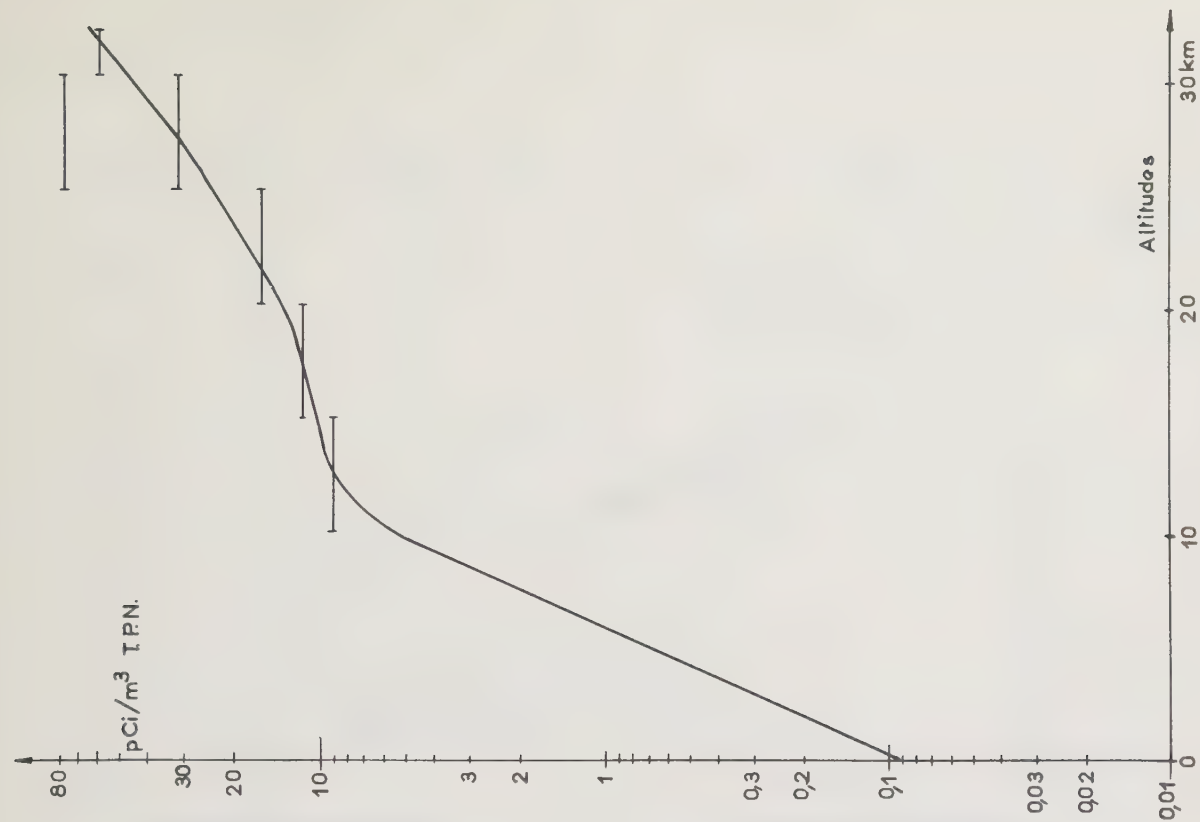


Fig. 7/III. 2 - Radioactivité β globale par unité de volume T. P. N
11-4-61.

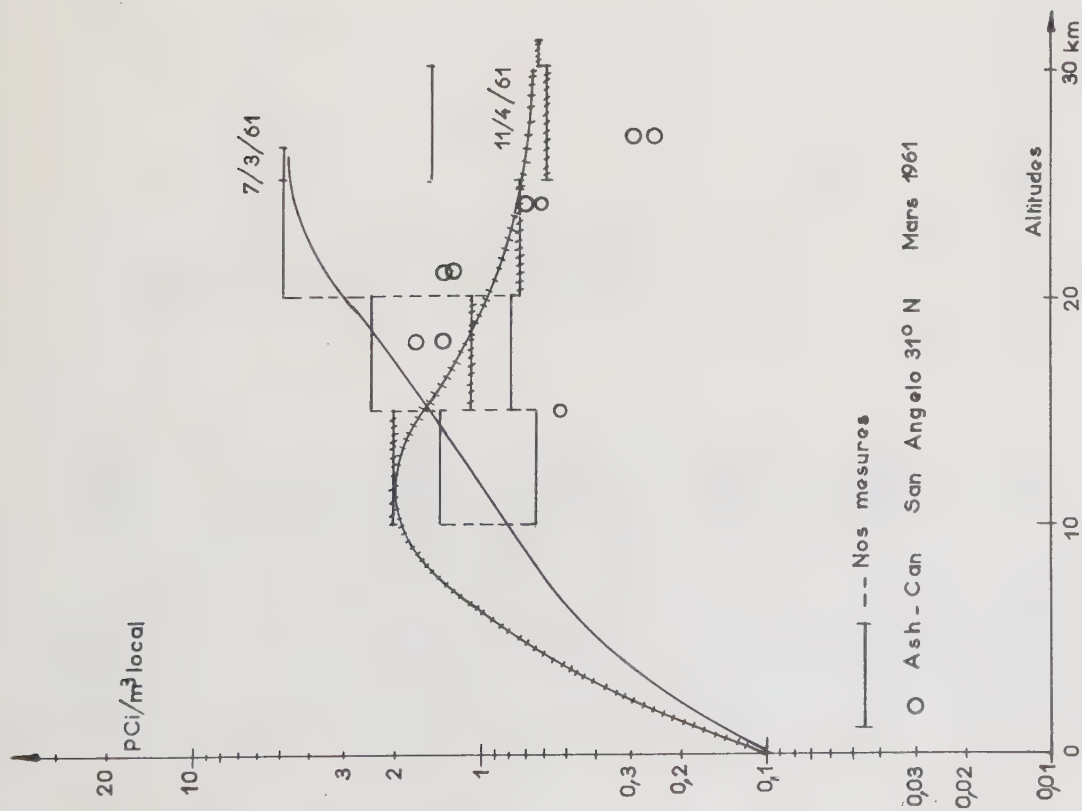


Fig. 6/III. 2 - Radioactivité β globale par unité de volume local.
Printemps 1961.

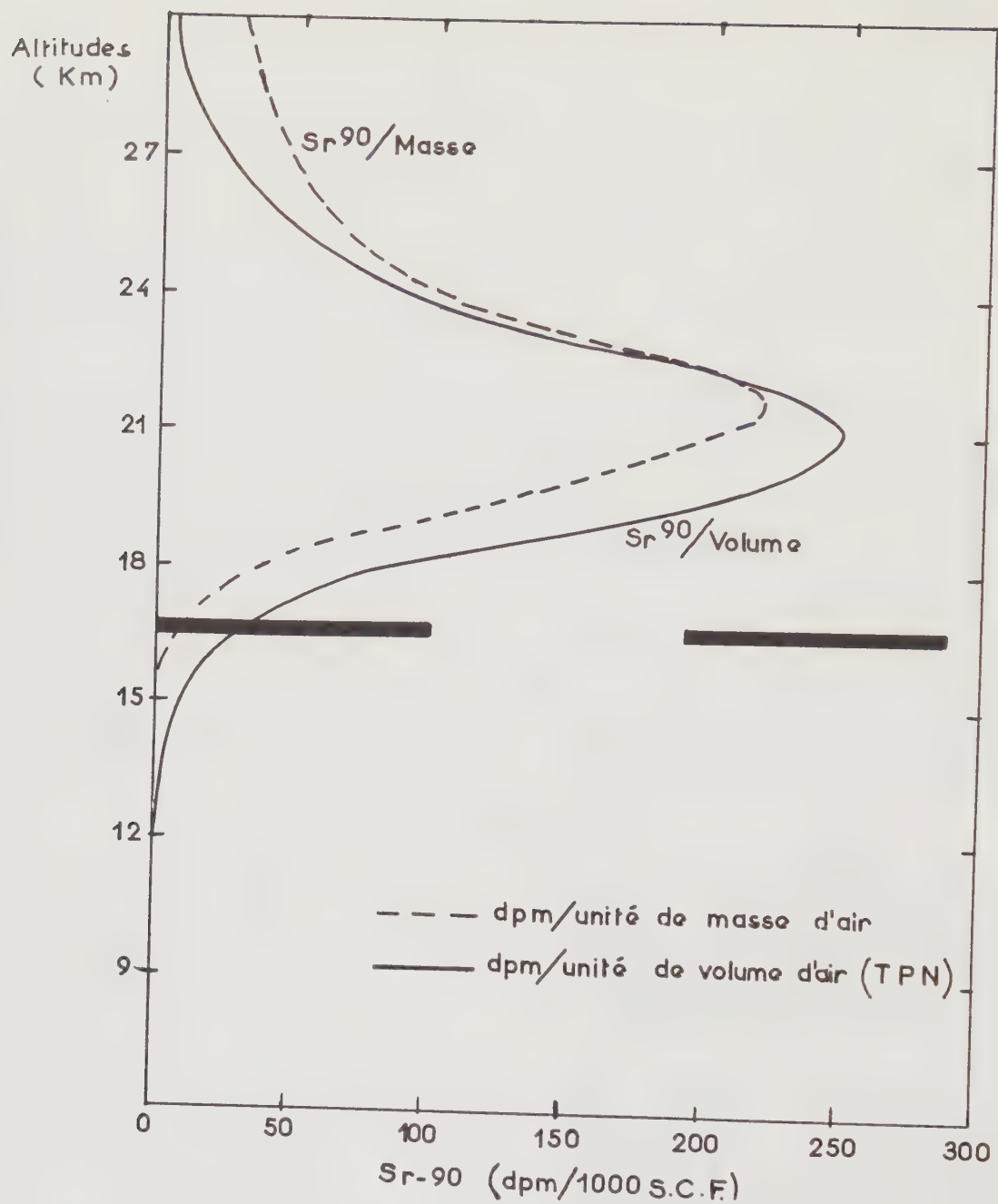


Fig. 8/III, 2 - Modèle de distribution verticale du strontium-90 (d'après Friend et Coll. /F6, vol. 3, page 240/).

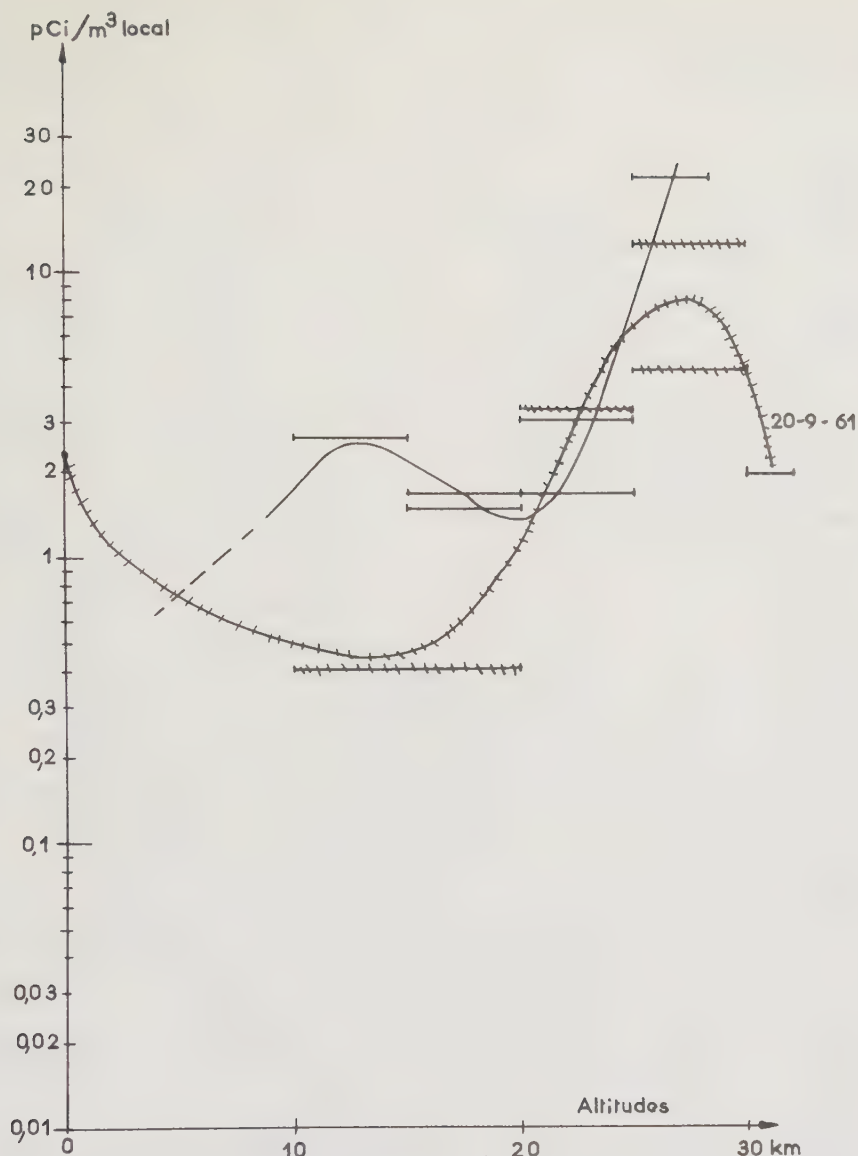


Fig. 9/III, 2 - Radioactivité β globale par unité de volume local, Septembre 1961.

III - 2/2.5 - Répartition dans la stratosphère de Avril à Décembre 1962.

Nous avons vu que la reprise des essais nucléaires par les U. S. A., en Avril 1962 ne s'était pas traduite dans l'hémisphère Nord par l'apparition à basse altitude de produits de fission jeunes. Par contre, l'étude spectrographique γ des prélèvements réalisés sur gaze à haute altitude, montre que le baryum-lanthane 140, absent dans toute la troposphère, apparaît dès le 10 Mai 1962 entre 15 et 30 km d'altitude, ainsi qu'on peut le vérifier sur les spectres γ des figures 11 & 12. Cette situation s'est prolongée durant tout le mois de Juin 1962. La reprise des essais soviétiques en Août 1962 a évidemment compliqué l'interprétation des résultats qui apparaissent alors très disparates, avec toutefois maintien des concentrations les plus élevées dans les prélèvements correspondant aux plus hautes altitudes.

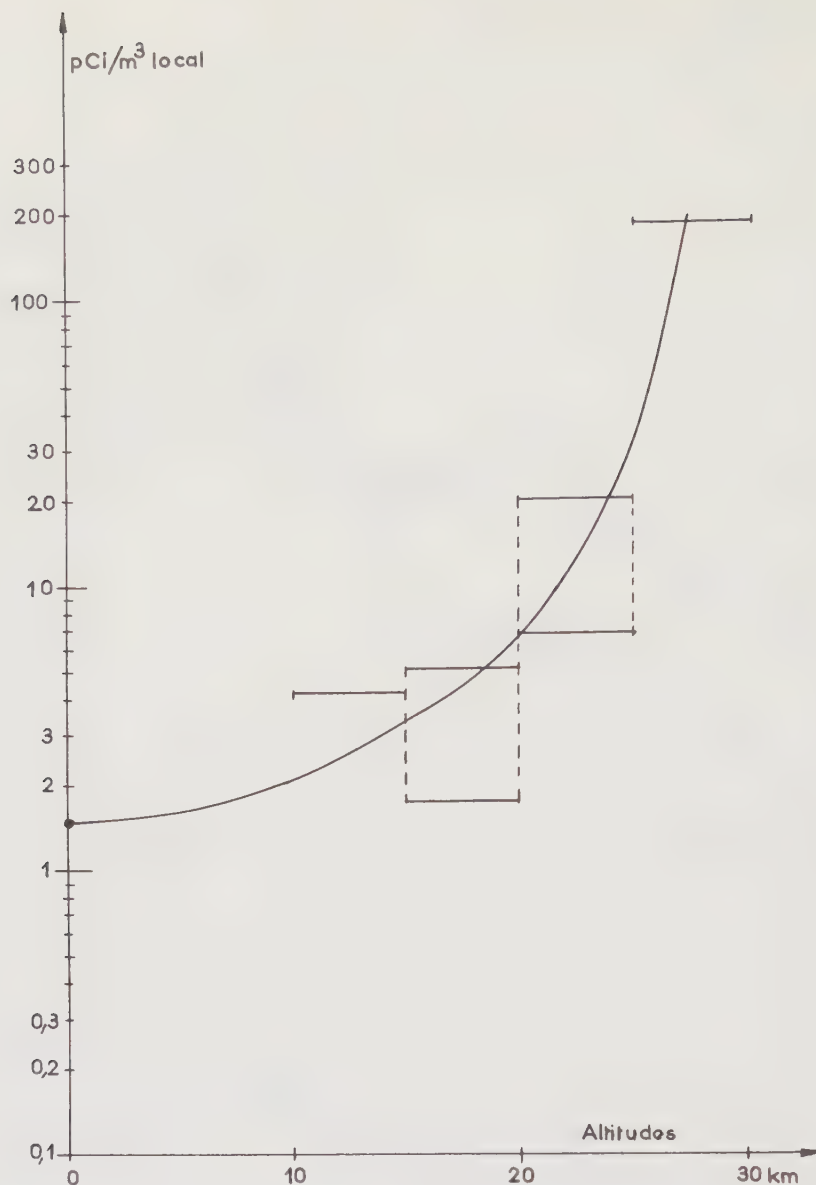


Fig. 10/III.2 - Radioactivité β globale par unité de volume local. 3.10.61.

III - 2/2.6 - Conclusions.

Nous avons vu ainsi que les rares mesures de radioactivité artificielle des aérosols stratosphériques que nous avons faites entre 1959 et 1962, recourent dans l'ensemble assez bien les résultats publiés aux U. S. A. Nos propres mesures complètent utilement les séries de mesures effectuées sur le continent Américain et permettent de préciser certains aspects des conclusions du rapport Hasp. Elles confirment de plus, très heureusement, diverses hypothèses que nous avons formulées à propos de l'interprétation des mesures de concentration au niveau du sol (chapitre II - 4).

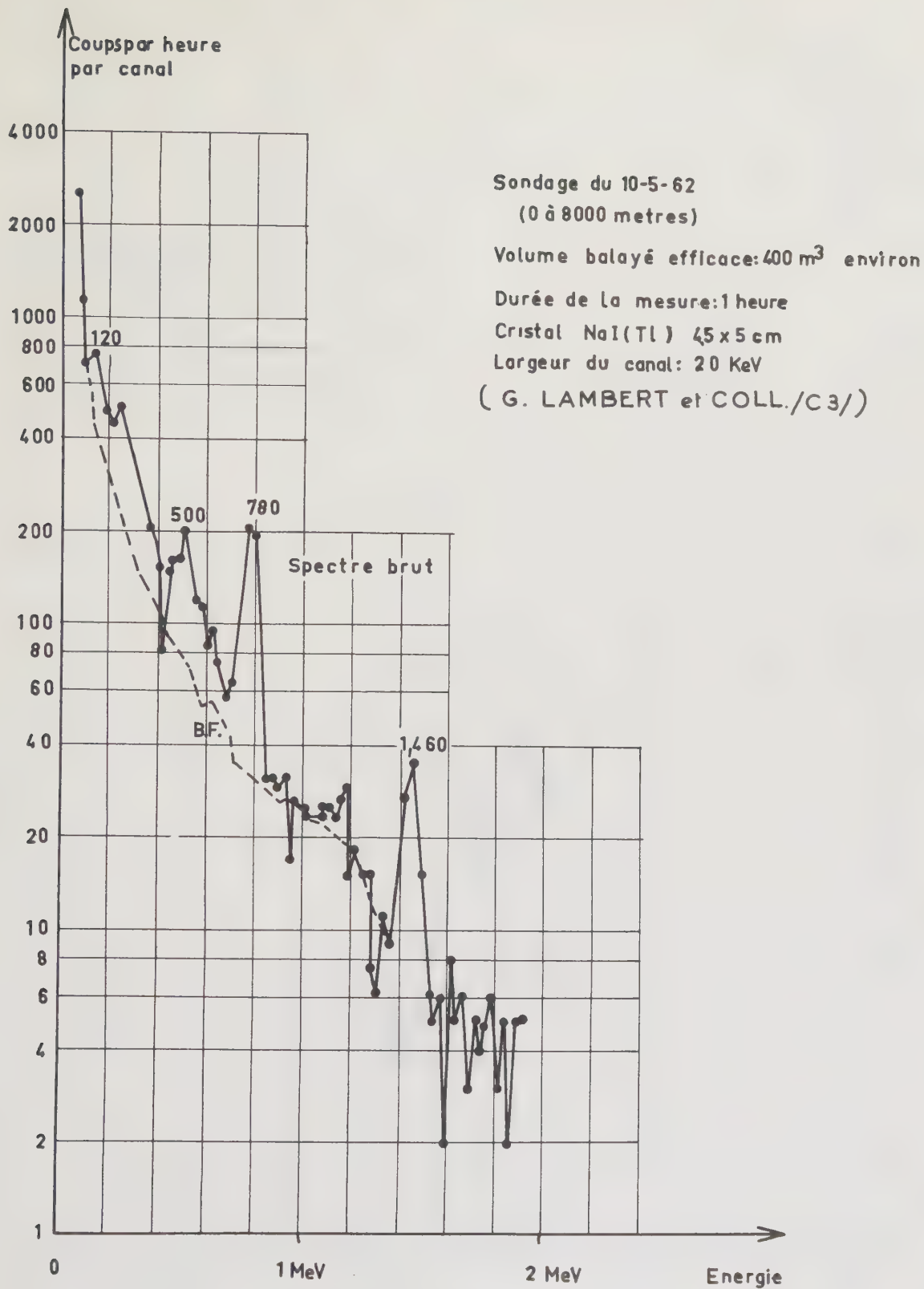


Fig. 11/III, 2 - Spectre γ . 15. 5. 62.

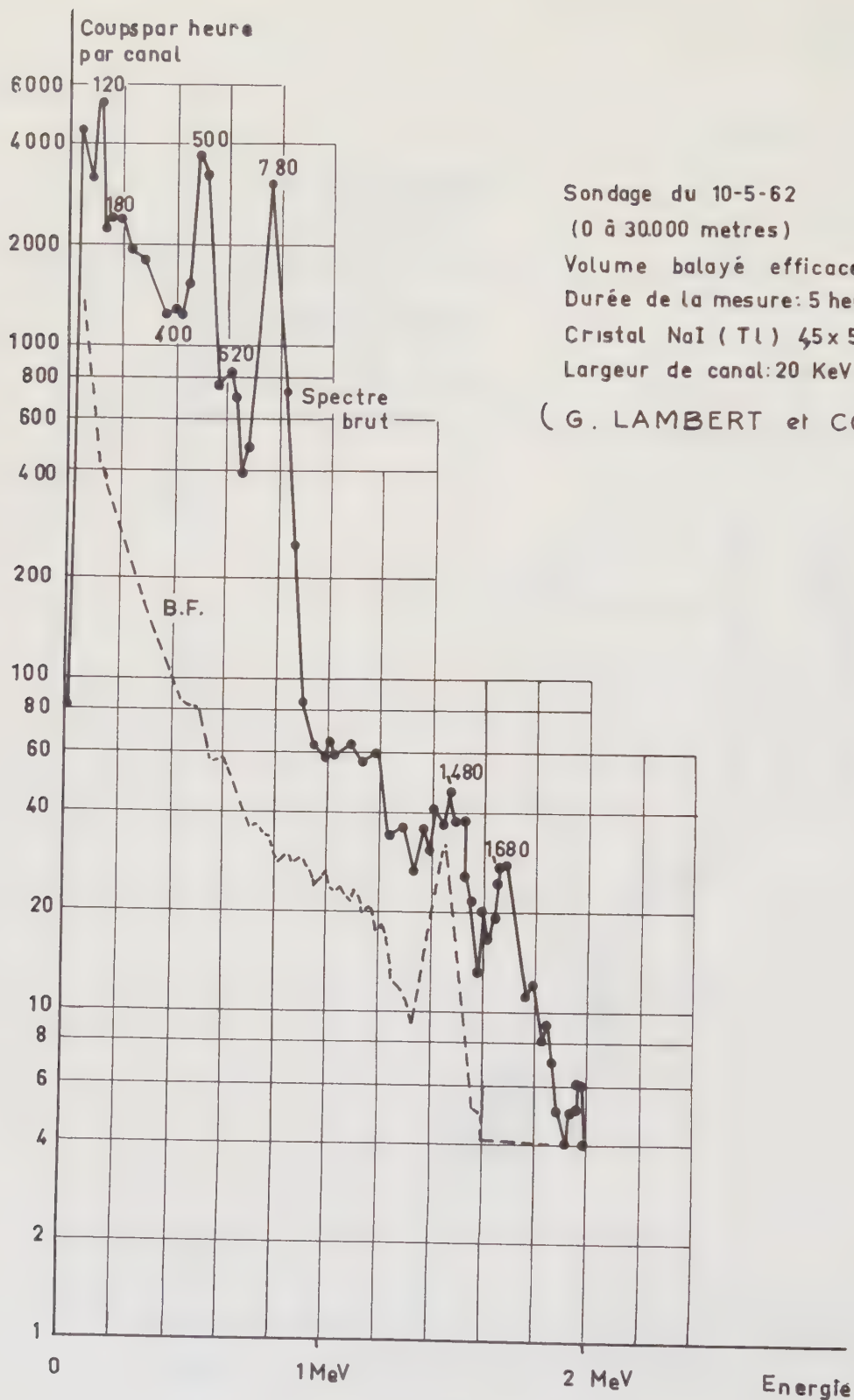


Fig. 12/III.2 - Spectre γ . 15.5.62.

APPENDICE AU CHAPITRE III - 2

Résultats des mesures de radioactivité artificielle β globale des aérosols à haute altitude

Date du prélèvement	Appareil utilisé	Résultats		
		Altitude km	Concentration pCi/m ³ local	Concentration pCi/m ³ d'air TPN
13. 5. 59	Standard	4,8 - 11	7,5	18,7
14. 5. 59	"	4,6 - 8,2	4,2	8,8
15. 5. 59	"	7,9 - 11,4	11,3	37,3
26. 5. 59	"	11 - 14,2	40	192
28. 5. 59	"	2 - 5,1	1,3	1,8
3. 6. 59	"	9,2 - 12,6	10,5	41
17. 6. 59	6 voies	1 - 5,8	6,8	8,8
"	"	5,8 - 11	6,6	17,8
"	"	11 - 15	4,9	25,5
"	"	15 - 19	6,0	57,6
"	"	19 - 26,6	4,4	104
30. 3. 60	"	1 - 5,8	0,55	0,7
"	"	"	0,65	0,8
"	"	5,8 - 11	1,3	3,5
"	"	"	0,8	2,1
"	"	11 - 15	1,6	8,3
"	"	11 - 16	1,7	9,3
14. 9. 60	"	11 - 15	1,1	5,7
"	"	15 - 19	3,1	29,7
"	"	"	3,3	31,7
"	"	19 - 23,3	3,3	62,7
7. 3. 61	"	10 - 15	1,4	6,3
"	"	15 - 20	0,8	8,3
"	"	"	0,7	7,2
"	"	20 - 25	4,9	113
"	"	"	2,5	57,7
"	"	25 - 26,1	4,9	172
11. 4. 61	"	10 - 15	2,1	9,4
"	"	15 - 20	1,1	11,5
"	"	20 - 25	0,7	16,1
"	"	25 - 30	0,6	31,1
"	"	"	1,5	77,8
"	"	30 - 31,4	0,65	56,7
12. 9. 61	"	10 - 15	2,65	11,9
"	"	15 - 20	1,5	15,6
"	"	"	1,7	17,7
"	"	20 - 25	1,7	39,1
"	"	"	3,1	71,3
"	"	25 - 28,3	22,2	1 023

Date du prélèvement	Appareil utilisé	Résultats		
		Altitude km	Concentration pCi/m ³ local	Concentration pCi/m ³ d'air TPN
20.9.61	6 voies	10 - 15	0,4	1,9
"	"	15 - 20	0,4	4,6
"	"	20 - 25	3,4	78,2
"	"	25 - 30	12,9	669
"	"	"	4,7	244
"	"	30 - 32	2	183
3.10.61	"	10 - 15	4,2	18,9
"	"	15 - 20	1,8	18,7
"	"	"	5,1	53
"	"	20 - 25	6,9	159
"	"	"	20	460
"	"	25 - 30,4	182	9 680
16.10.61	Gaze 0,1 m ²	0 - 26,3	3,4	12,2
31.10.61	"	0 - 24,4	4	13,8
15.11.61	Gaze 0,1 m ²	0 - 21	34,3	103
31.1.62	Gaze { 0,61 m ² + 2,45 m ²	0 - 9,5	2,8	5,0
"	6 voies	10 - 15	51	229
"	"	15 - 17	14,3	119
1.3.62	"	10 - 15	8,1	36,4
"	"	15 - 21	0,6	6,7
20.3.62	"	10 - 15	1,3	5,8
"	"	15 - 21	0,4	4,4
"	"	21 - 23	1,5	32,8
22.3.62	"	10 - 15	80	360
"	"	15 - 21	2,1	23,3
"	"	21 - 25	24,7	642
10.5.62	Gaze 0,61 m ²	0 - 7,6	1,3	2,1
"	"	7,6 - 35	3,2	33
23.5.62	"	0 - 10,7	0,9	1,7
"	"	10,7 - 24	2	17,6
29.5.62	"	0 - 10,4	1,5	2,5
4.6.62	"	0 - 10,5	0,2	0,4
12.6.62	"	0 - 12,3	0,9	1,8
18.6.62	"	0 - 27,7	1,4	5,6
9.10.62	"	0 - 10,3	5,0	9
"	"	10,3 - 33,2	9,9	129
16.10.62	"	0 - 10,3	2,8	5
"	"	10,3 - 16,8	14	77
"	"	16,8 - 32	50,3	1 308

QUATRIÈME PARTIE

LES RETOMBÉES RADIOACTIVES

CHAPITRE IV. 1

PROBLEMES POSES PAR LA MESURE DU DEPOT SUR LE SOL DES DEBRIS RADIOACTIFS ARTIFICIELS

IV - 1/1 - RAISONS DE CETTE ETUDE

Le nettoyage très intense des aérosols présents dans la troposphère, qui favorise l'emploi des aérosols radioactifs comme traceurs atmosphériques en interdisant leur accumulation à basse altitude, modifie de façon capitale les concentrations observées. C'est à ce titre que nous avons dû, à plusieurs reprises, tenir compte de ce phénomène lors de l'interprétation des mesures de concentration de ces aérosols. Son étude proprement dite permettra donc d'apprécier les lois et la rapidité du nettoyage de la basse atmosphère.

En ce qui concerne les débris radioactifs d'origine artificielle, une raison supplémentaire très importante a incité, dès le début de l'ère atomique, à mesurer leur taux de déposition et leur accumulation, à la surface du globe. En effet, il était prévisible que l'irradiation externe de l'homme et des animaux, provoquée par ces débris, serait généralement une faible part du rayonnement naturel auquel ils sont soumis de toute éternité. Au contraire, les propriétés chimiques et biochimiques de certains radionuclides, donnent naissance à des phénomènes de concentration biologique, ce qui peut entraîner une irradiation importante de certains organes critiques. Ainsi les isotopes radioactifs de l'iode s'accumulent dans la thyroïde, et le strontium 90 dans la moëlle des os. Tous ces processus de concentration ont pour première phase une assimilation des radionuclides, essentiellement à partir des aliments. On s'explique donc l'intérêt des hygiénistes pour les deux paramètres dont dépend la contamination des aliments : le taux de dépôt des débris, qui fixe la contamination externe des feuilles et des tiges, et leur accumulation dans les couches superficielles du sol, qui entraîne la contamination interne des végétaux, par métabolisation.

La prévision et la connaissance de ces deux grandeurs, en fonction des données géographiques et en fonction du temps constituent ainsi l'objectif hygiéniste fondamental de l'étude des retombées radioactives. D'un autre côté, la connaissance du dépôt déjà accumulé permet de compléter les évaluations globales des quantités de produits radioactifs créés par les explosions, donnée qui est nécessaire à la compréhension de la circulation générale des débris radioactifs, et à la prévision des effets de nouvelles explosions.

Enfin, notons que les radionuclides déposés à la surface du sol subissent à nouveau une évolution géochimique, et que l'étude de leur comportement (accumulation, diffusion, circulation, etc...) permet de nouvelles et intéressantes études géologiques, en particulier en glaciologie, hydrologie, et océanographie.

IV - 1/2 - MODES DE NETTOYAGE DE L'ATMOSPHERE ET PROBLEMES POSES PAR LEUR ETUDE

IV - 1/2, 1 - Nous avons vu, dans la Première Partie, que le dépôt sur le sol, par gravité, de débris doués d'une vitesse propre de chute non négligeable, devait être considéré comme exceptionnel. Deux séries de phénomènes seulement pourront donc intervenir dans ce dépôt.

1/ Les échanges directs entre les plus basses couches de l'atmosphère et la surface du sol, qui dépendront de trois paramètres différents :

- possibilité de ces échanges.
- concentration et propriétés physiques (granulométrie) des aérosols.
- vitesse de renouvellement des aérosols dans les basses couches de l'atmosphère.

2/ L'entraînement des aérosols par les précipitations, la capture pouvant être effectuée soit par les gouttes d'eau en train de tomber, soit plutôt au cours de leur condensation, comme le suggère Facy /F1/ /F2/. Ce mode de dépôt au sol fera donc intervenir la totalité des phénomènes météorologiques qui règlent la condensation de la vapeur d'eau et la chute des gouttes d'eau ou des cristaux ainsi formés, dans toute leur complexité, et avec toutes les fluctuations aléatoires dont ils sont susceptibles.

Faute de connaître, au départ, l'importance relative de ces divers modes de nettoyage de la troposphère, le seul moyen d'étudier l'importance du dépôt radioactif consiste à mesurer la radioactivité accumulée dans le sol. Toutefois, la nature du sol et de la végétation peuvent modifier considérablement le taux de déposition. Le sol ne se comporte jamais comme une substance inerte : de nombreux échanges chimiques s'opèrent entre le sol d'une part, le sous sol, la végétation et les animaux d'autres part, qui rendent hasardeuse l'interprétation des mesures de contamination du sol. Enfin, notons que les mesures successives de la radioactivité accumulée peuvent donner par différence le taux de déposition, mais avec une très mauvaise précision.

IV - 1/2.2 - On cherchera donc à remplacer une portion de la surface du sol par une aire artificielle sur laquelle il est aisé de recueillir le dépôt. Encore faut-il que les propriétés de cette aire artificielle soient voisines de celles du sol qui l'entoure, du point de vue du pouvoir de rétention des débris, de l'action sur les plus basses couches de l'atmosphère, de la conductivité thermique, etc... Et pour pouvoir généraliser les résultats observés sur un type de sol, il faudra connaître les modifications apportées sur un changement quelconque dans la nature du sol et de sa végétation. Somme toute, pour atteindre une mesure satisfaisante du taux et des lois de la déposition des débris radioactifs, on est amené à compliquer encore les problèmes atmosphériques et météorologiques, par l'intervention des propriétés mécaniques, physiques et chimiques de la surface du sol.

Une autre voie de mesure consiste à disposer d'un instrument de collection standardisé, plus ou moins analogue aux pluviomètres météorologiques classiques, situé suffisamment près du sol pour que le dépôt dans le collecteur puisse être assimilé au dépôt sur le sol, et suffisamment loin pour que, moyennant quelques précautions dans le choix de l'emplacement du collecteur, on évite les influences perturbatrices de l'environnement.

Divers paramètres continuent malheureusement de rendre la standardisation illusoire, tels les paramètres climatiques comme la vitesse moyenne du vent, la turbulence atmosphérique, etc... qui agissent d'ailleurs également dans le cas des mesures de hauteurs de précipitations. Mais ici le problème est beaucoup plus ardu encore, car aux diverses perturbations dont les météorologistes sont familiers s'ajoute le fait que ce que nous cherchons à mesurer ce n'est plus un volume d'eau, mais la faible quantité des substances qu'elle contient à l'état dissout ou à l'état de suspension, substances dont la concentration peut être affectée par les phénomènes complexes de nettoyage ou de réévaporation, et capables d'autre part de réagir avec le collecteur chimiquement ou physiquement (par adsorption par exemple). De plus, ces collecteurs, capables de recueillir des gouttes d'eau de dimensions suffisantes pour posséder une vitesse de chute propre, sont à priori sans action sur les autres formes de dépôt que nous pouvons imaginer, et que nous étudierons sous le nom de "retombées sèches".

A ce point de notre exposé, entreprendre l'étude du taux de déposition apparaît véritablement hasardeux. L'importance généralement prépondérante du dépôt par l'intermédiaire des précipitations apporte heureusement quelques simplifications dans ce domaine, tandis que les diverses actions physico-chimiques suivant la collection pourront être évitées moyennant quelques précautions dans la conception et la réalisation des collecteurs spéciaux utilisés.

IV - 1/2.3 - Mesures de radioactivité du dépôt collecté.

Comparée aux difficultés soulevées par les problèmes de collection du dépôt, la mesure de la radioactivité des échantillons ainsi obtenus ne paraît pas très ardue. Tout ce qui a été dit des mesures de radioactivité β globale des aérosols resté valable ici, à ceci près que l'activité d'échantillons de matière condensée sera généralement bien supérieure aux activités des filtres utilisés pour les aérosols. La contre partie de ce fait tient dans la possibilité d'avoir une autoabsorption non négligeable due à la masse de l'échantillon mesuré. Dans le cas où on effectue des séparations chimiques ou des mesures spectrographiques γ , seul subsiste l'accroissement de radioactivité qui permettra de réaliser plus aisément ces deux opérations.

IV - 1/2.4 - Interprétation des résultats.

Là encore, comme nous l'avons fait remarquer, nous nous trouvons en face d'un problème atmosphérique et météorologique dans toute sa complexité. Si on ne veut pas entrer trop avant dans la question, on devra se contenter de mesures intégrées sur des périodes de temps suffisamment longues pour que l'infinie variété des conditions météorologiques s'estompe devant les caractères climatiques fondamentaux, et nous ne pourrons alors espérer atteindre par ces études que quelques caractéristiques très générales de la déposition et un bilan du dépôt radioactif.

IV - 1/3 - DESCRIPTION DU CRAPAL ET DU RESEAU DE STATIONS DE COLLECTION DES RETOMBÉES RADIOACTIVES

IV - 1/3.1 - En 1958, C. Jehanno et J. Labeyrie ont imaginé un collecteur de retombées radioactives qui puisse convenir aussi bien aux retombées sèches qu'aux produits contenus dans l'eau de pluie, à l'état dissout ou à celui de suspension, en associant à un appareil analogue à un pluviomètre, une surface constituée par des bandes adhésives, chargées de collecter les poussières /J5/. Cet appareil appelé "Crapal" (c'est-à-dire "Collecteurs de radioactivité artificielle des précipitations atmosphériques liquides") a permis d'équiper un réseau de stations de prélèvements étendu au monde entier.

La version définitive de cet appareil est donnée figures 1 et 2. On en trouvera la description détaillée annexe 7, complétée par le mode d'exploitation et la mesure de son rendement.

IV - 1/3.2 - Réseau de stations.

Comme nous l'avons indiqué, la plupart des Crapal ont été installés dans des stations météorologiques, dont le personnel a bien voulu assurer la maintenance de cet appareil supplémentaire. La liste des stations figure au tableau I ci-dessous. La répartition géographique en est indiquée sur les figures 3 et 4.

TABLEAU I

Liste des Stations de prélèvements des retombées radioactives

Stations	Pays	Latitude	Longitude	Altitude
Lille	France	50° 34' N	3° 06' E	44 m
Cherbourg	"	49° 39' N	1° 38' W	8 m
Reims	"	49° 18' N	4° 02' E	99 m
Saclay*	"	48° 43' N	2° 09' E	160 m
Strasbourg	"	48° 33' N	7° 38' E	152 m
Rostrenen	"	48° 14' N	3° 20' W	268 m
Le Mans	"	47° 56' N	0° 12' E	52 m
Luxeuil	"	47° 47' N	6° 21' E	273 m
Dijon	"	47° 16' N	5° 16' E	225 m
Nantes	"	47° 10' N	1° 36' W	27 m
Bourges	"	47° 04' N	2° 23' E	162 m
La Rochelle	"	46° 00' N	1° 20' W	10 m
Amberieu	"	45° 49' N	5° 20' E	254 m
Limoges	"	45° 49' N	1° 17' E	284 m
Clermont-Ferrand	"	45° 48' N	3° 09' E	332 m
Cognac	"	45° 40' N	0° 19' W	30 m
Point K (France I et France II)	Océan Atlantique	45° 00' N	16° 00' W	3 m

* Stations non tenues par la Météorologie Nationale.

Stations	Pays	Latitude	Longitude	Altitude
Arcachon *	France	45° N	1° W	
Bordeaux	"	44° 51' N	0° 42' W	48 m
Lus la Croix Haute	"	44° 41' N	5° 42' E	1 036 m
Monaco *	"	44° 20' N	7° E	10 m
Millau	"	44° 04' N	3° 04' E	408 m
Toulouse	"	43° 37' N	1° 22' E	152 m
Biarritz	"	43° 28' N	1° 32' W	76 m
Marignane	"	43° 27' N	5° 12' E	3 m
Perpignan	"	42° 44' N	2° 52' E	44 m
Ajaccio	"	41° 55' N	8° 48' E	5 m
Alger	Algérie	36° 43' N	3° 14' E	25 m
Colomb Béchar	"	31° 37' N	2° 13' W	781 m
Agadir	Maroc	30° 23' N	9° 34' W	19 m
Aoulef	Algérie	26° 58' N	1° 05' E	290 m
Fort Trinquet	Mauritanie	25° 14' N	11° 37' W	360 m
Tamanrasset	Algérie	22° 47' N	5° 31' E	1 378 m
Atar	Mauritanie	20° 31' N	13° 04' W	224 m
Gao	Mali	16° 16' N	0° 03' W	260 m
Dakar *	Sénégal	14° 44' N	17° 30' W	23 m
Fort de France	Martinique	14° 36' N	61° 0' W	10 m
Zinder	Niger	13° 48' N	9° 0' E	479 m
Niamey	Niger	13° 29' N	2° 10' E	226 m
Bamako	Mali	12° 38' N	8° 04' W	332 m
Fort Lamy	Tchad	12° 08' N	15° 02' E	300 m
Abidjan	Côte d'Ivoire	5° 15' N	3° 56' W	16 m
Cayenne	Guyane	4° 50' N	52° 22' W	9 m
Bangui	Rep. Centre Africaine	4° 23' N	18° 34' E	381 m
Douala	Cameroun	4° 01' N	9° 43' E	13 m
Franceville *	Gabon	2° S	10° E	
Brazzaville *	Congo	4° 15' S	15° 14' E	314 m
Diego Suarez	Madagascar	12° 17' S	49° 18' E	29 m
Papeete	Tahiti	17° 32' S	149° 35' W	2 m
Tananarive	Madagascar	18° 48' S	47° 29' E	1 264 m
Saint Denis	La Réunion	20° 53' S	55° 31' E	12 m
Nouméa *	Nouvelle Calédonie	22° S	165° E	
Tuélar	Madagascar	23° 24' S	43° 44' E	8 m
Rapa	Tahiti	27° 30' S	144° 31' W	9 m
Ile Amsterdam	T. A. A. F.	37° 50' S	77° 34' E	28 m
Iles Kerguelen	"	49° 20' S	70° 13' E	14 m
Terre Adélie *	"	65° 30' S	144° E	5 m

* Stations non tenues par la Météorologie Nationale



Figure 1/IV.1 - Le C. R. A. P. A. L.



Figure 2, IV. 1 - Nouveau dispositif C. R. A. P. A. L. avec gaze.

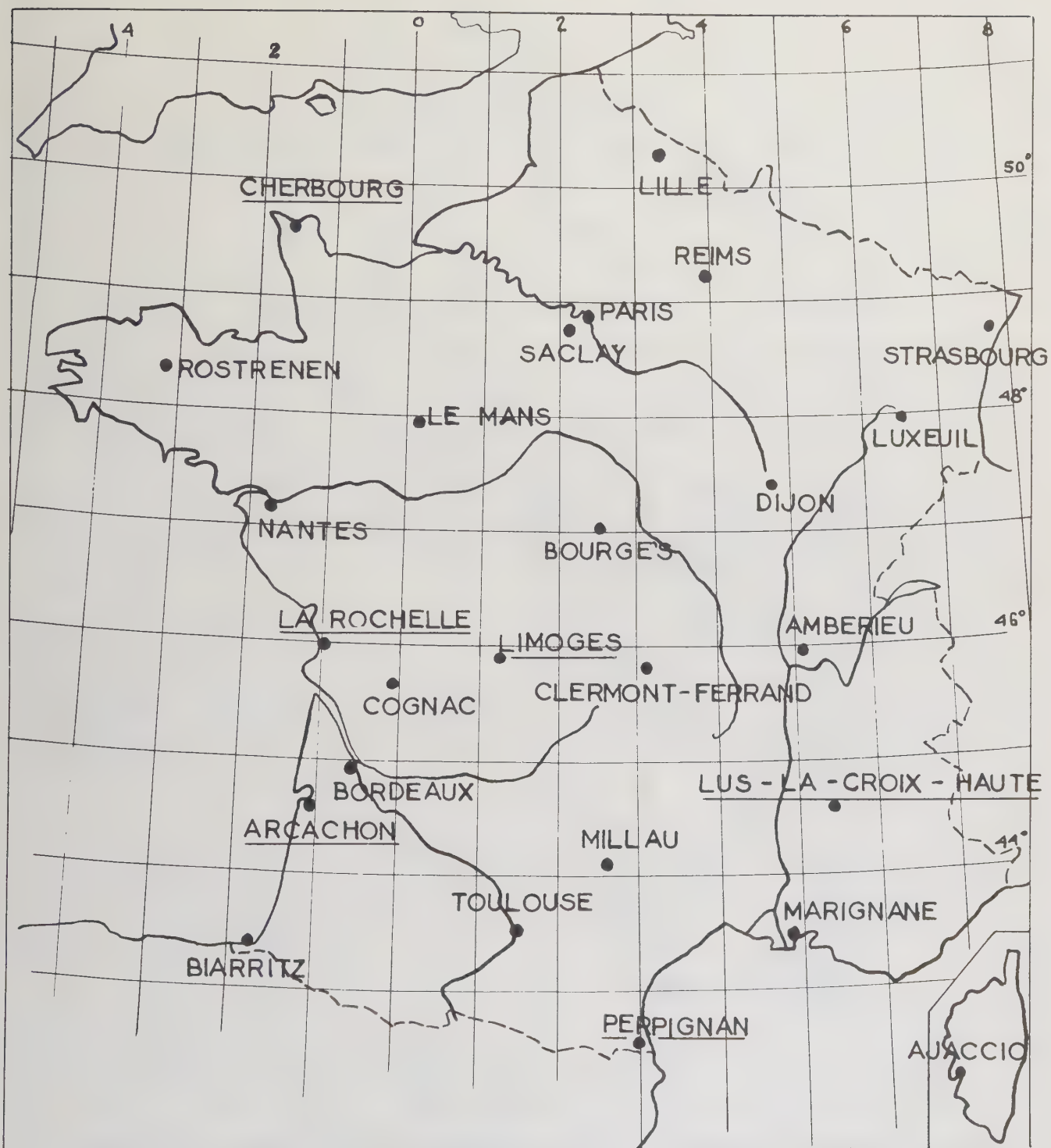


Fig. 3/IV.1 - Stations de collection des retombées radioactives équipées du CRAPAL. Les stations soulignées ont commencé à fonctionner en 1962.

CHAPITRE IV. 2

EXAMEN DES RESULTATS DES MESURES DE RETOMBÉES RADIOACTIVES SUR LA FRANCE

IV - 2/1 - ASPECT ALEATOIRE DES MESURES DE DEPOT DES DEBRIS RADIOACTIFS

IV - 2/1.1 - La première observation que l'on peut faire lorsqu'on examine les résultats du réseau Crapal, c'est l'existence de fluctuations dans une même station d'un mois à l'autre, ou un mois, entre des stations relativement voisines. Nous avons longuement analysé de semblables fluctuations, au chapitre II - 4, à propos des aérosols. Mais il s'agissait alors essentiellement de valeurs moyennes *journalières* de concentration, alors que nous constatons ici d'importantes fluctuations des valeurs moyennes *mensuelles*, du dépôt collecté.

On voit ainsi, figures 1 et 2, que la radioactivité β globale du dépôt mensuel peut varier d'un facteur 2, entre les stations voisines de Lille et Reims (figure 1) ainsi que Bordeaux et Cognac (figure 2). Toutefois, l'allure générale des diagrammes reste voisine et en particulier les valeurs remarquables de Février 1959, Juin 1959, Février 1960, se retrouvent sur tous ces diagrammes. De plus, les variations entre deux mesures consécutives sont généralement de même signe dans deux stations voisines.

Les écarts entre deux valeurs consécutives dans la même station sont souvent supérieures à un facteur 3. Ils dépassent un facteur 15 à Reims entre Février et Mars 1959 (10 seulement à Lille).

Contrairement à ce qui avait été constaté dans le cas des aérosols, les fluctuations restent importantes entre deux collecteurs très voisins. Ainsi au printemps 1960 nous avons obtenu les résultats indiqués au tableau I, pour des Crapals installés à l'intérieur du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, dans des sites bien dégagés et éloignés les uns des autres de quelques centaines de mètres seulement :

TABLEAU I
Activités recueillies (impulsions par minute)

Date de collection	1er Crapal (Labo. Chaud)	2ème Crapal (EL. 3)	3ème Crapal (Cyclotron)
23-30 Mars 1960	41,1	42,9	26,0
30 Mars - 27 Avril	13,9	17,9	16,5
27 Avril - 11 Mai	30,0	43,3	23,9
11 - 25 Mai	19,1	25,0	18,4
Total	104,1	129,1	84,8

Ces fluctuations ne peuvent être imputées aux collecteurs eux-mêmes, les écarts entre deux appareils distants de quelques mètres ne dépassant guère 20 %.

IV - 2/1.2 - Si l'on examine maintenant les résultats de plusieurs stations de la région parisienne, espacées de quelques kilomètres et équipées de Crapals identiques (tableau II), on observe que les écarts entre les valeurs mensuelles du dépôt collecté sont tout à fait du même ordre de grandeur que ceux du tableau I.

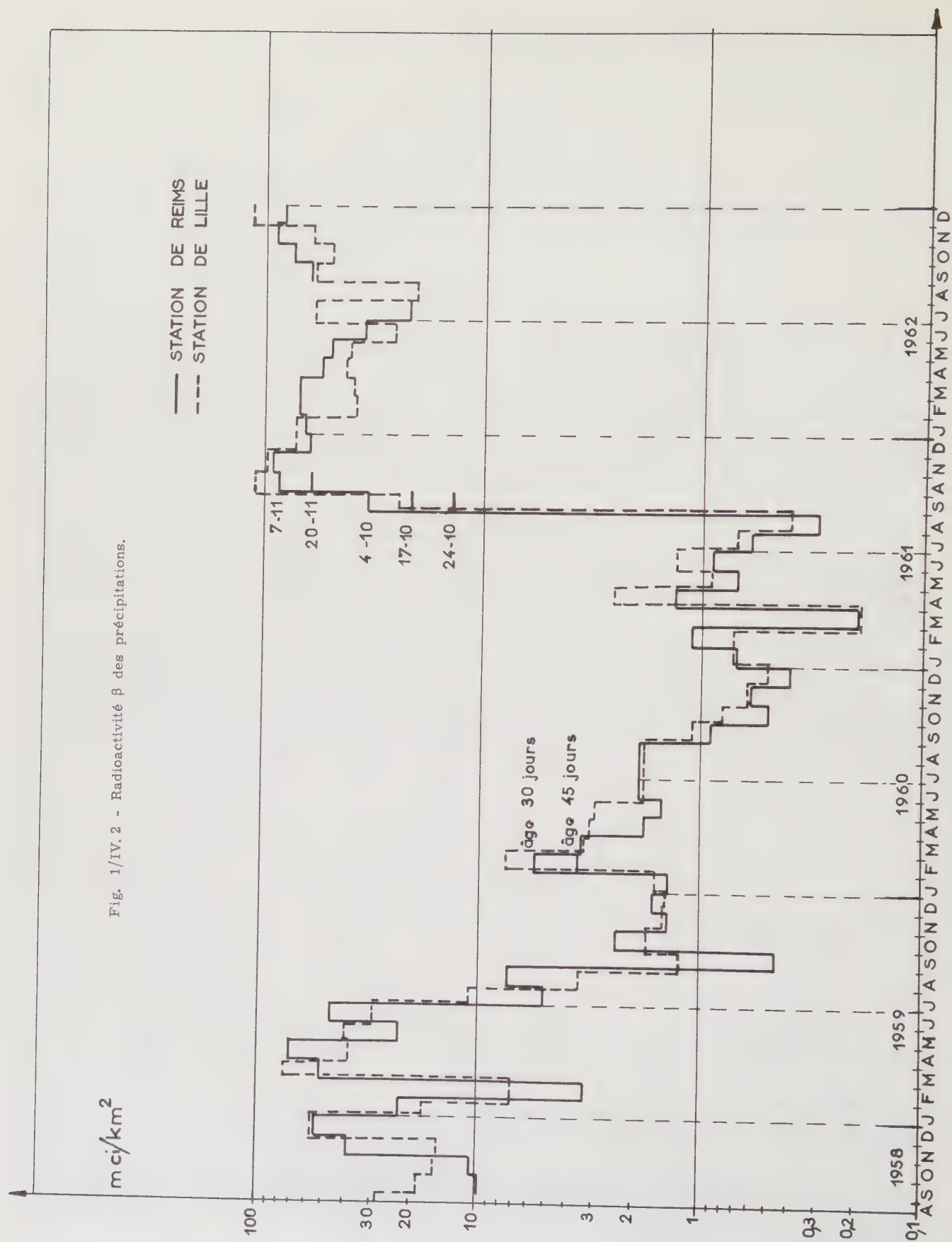
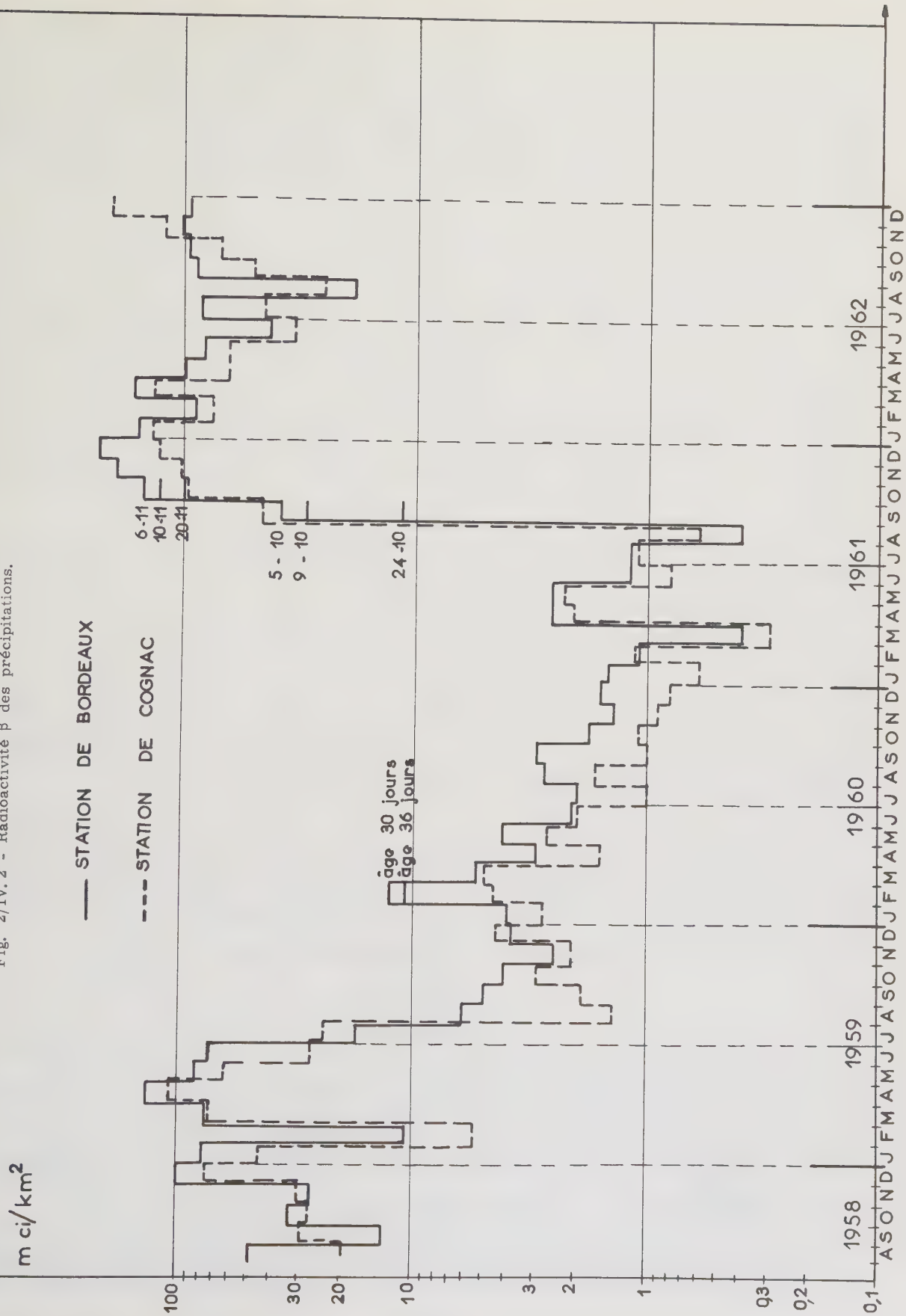


Fig. 2/IV.2 - Radioactivité β des précipitations.



Toutefois, si nous examinons les différentes valeurs annuelles du dépôt radioactifs, nous voyons que les écarts entre les différentes stations sont beaucoup plus faibles que ceux que nous observons chaque mois. Par rapport à la moyenne établie au tableau II, pour la région parisienne les écarts relatifs annuels deviennent tous inférieurs à 31 %. Ainsi les diverses fluctuations enregistrées au cours de l'année 1960 entre les différentes stations, semblent se compenser, ce qui caractérise des fluctuations purement aléatoires. Ainsi, sur la base annuelle, une station de collection du dépôt des débris radioactifs artificiels représente bien la région où elle se trouve située. Dans le cas de notre exemple, cette région aurait une superficie supérieure à 1 000 km². Ceci justifie pleinement l'expression des résultats du tableau II en unité de radioactivité par km².

TABLEAU II
Activités recueillies dans la Région Parisienne (millicuries par km²)

Mois	Saclay	Orsay 1	Orsay 2	Paris Institut du Radium	Arcueil Institut du Radium	Paris (Quai Branly)	Val Joyeux	Moyennes
Janvier	1,7	2,4	1,9	1,8	1,7	1,5	1,2	1,7
Février	6,1	6,3	4,2	6,5	4,6	2,1	1,2	4,4
Mars	3,8	5,3	3,2	4,2	4,1	4,5	6,3	4,5
Avril	2,1	2,8	1,9	6,3	5,2	1,2	1,9	3,1
Mai	1,7	2,1	1,7	2,4	1,5	1,2	0,6	1,6
Juin	1,2	2,4	2,8	3,7	2,4	2,7	1,9	2,4
Juillet	1,8	2,8	1,6	-	2,5	1,3	1,1	1,9
Août	1,9	1,5	2,2	-	5,6	1,4	1,1	2,3
Septembre	0,9	1,2	0,8	2,4	1,0	1,1	0,9	1,2
Octobre	1,1	1,1	0,6	0,8	2,4	0,6	0,4	1,0
Novembre	0,9	0,8	0,6	0,8	0,9	1,1	0,4	0,8
Décembre	0,7	0,7	1,0	0,5	0,8	0,9	0,8	0,8
Total 1960	23,9	29,4	22,5	-	32,7	19,6	17,8	25,7
Ecart/moyenne (%)	-7	14,3	-12,4	-	27,2	-23,7	-30,7	-

Une expérience du même genre a été entreprise sur les côtes méditerranéennes, donc dans un climat très différent du climat parisien. Trois Crapals ont été installés à Nice, au sommet du Mont Agel (1050 m) et sur la terrasse du Musée Océanographique de Monaco, avec la collaboration de M. Thommeret, Directeur du Laboratoire du Musée Océanographique de Monaco.

Les résultats de ces comparaisons sont indiqués dans le tableau III ci-dessous :

TABLEAU III
Activité déposée (mCi/km²)

Période	Nice	Monaco	Mont Agel
Mai - Décembre 1960	10,2	10,4	17,5
Janvier - Août 1961	6,2	8,3	10,9
Septembre 1961 - Avril 1962	1 236,7	1 249,9	1 242,0

On voit que les stations côtières indiquent des valeurs très voisines, la station d'altitude donnant des résultats sensiblement supérieurs. A partir de Septembre 1961, les résultats deviennent

très semblables dans les trois stations, ce qui peut être attribué au mode différent de contamination, ainsi que nous l'avons indiqué au chapitre II - 4.

IV - 2/1.3 - Dans la mesure où une station de collection représente bien une région de dimensions non négligeables (tout au moins à l'échelle annuelle), on doit admettre que dans une région climatique homogène, les variations géographiques du dépôt radioactif doivent être continues. Les interpolations sont alors légitimes et doivent conduire à une valeur très proche de celle qui est trouvée dans une station située au centre de cette zone. Nous avons vérifié cela pour la région du Nord-Ouest de la France, en comparant les résultats obtenus à Saclay, et ceux des stations les plus proches situées tout autour, à savoir, Lille, Reims, Dijon, Bourges et Le Mans. Les résultats obtenus de 1959 à Juillet 1962 dans ces stations, ainsi que leurs moyennes sont indiqués au tableau IV, à côté des résultats de Saclay. Les écarts relatifs entre Saclay et la moyenne des cinq autres stations du Nord-Ouest sont indiqués figure 3, mois par mois. On voit qu'ils dépassent rarement 40 %, mais qu'ils atteignent à deux reprises des valeurs très supérieures à 100 %. Des barres horizontales indiquent les écarts relatifs, au cours de périodes de plusieurs mois. A l'exception de la première partie de l'année 1961, ces écarts restent inférieurs à 15 %. Enfin, pour l'ensemble de la période considérée, de 4 ans 1/2, l'écart entre Saclay et la moyenne arithmétique des cinq autres stations est de 2,7 %, valeur extrêmement faible.

On voit bien, sur le tableau IV, que les écarts relatifs entre Saclay et la région parisienne d'une part, et la moyenne du Nord-Ouest de la France d'autre part, sont très faibles. Au contraire la plupart des stations situées au pourtour de la zone considérée sont plus écartées de cette moyenne. On note également un écart sensible entre les résultats dans la région parisienne et dans l'ensemble de la France, qui n'ont pas de raison particulière d'être voisine.

TABLEAU IV
Activité recueillies de 1959 à Juillet 1962

Région	Activités du dépôt (mCi/km ²)	Ecart relatif (/ moyenne France N.O.)
Lille	868,3	- 13,2 %
Reims	887,6	- 11,2 %
Dijon	978,5	- 2,1 %
Bourges	1 349,2	+ 34,9 %
Le Mans	915,3	- 8,4 %
Moyenne France N.O. (non compris R. P.)	999,8	-
Région Parisienne (y compris Saclay)	1 034,7	3,4 %
Saclay	957,0	4,3 %
Moyenne France (y compris France N.O.)	1 225,0	22,5 %

IV - 2/1.4 - En conclusion, nous pouvons dire :

1/ De fortes fluctuations, purement aléatoires, affectent les mesures du dépôt radioactif mensuel, dans une station donnée. Ces fluctuations sont compensées, dès que l'on considère une période de temps suffisamment longue (au minimum un semestre).

2/ A l'intérieur d'une zone climatique homogène, même de dimensions réduites à quelques kilomètres carrés, d'importantes fluctuations du dépôt radioactif se produisent entre les différentes stations de cette zone.

3/ La distribution du dépôt radioactif dans une large zone à climat homogène est continue et régulière mais peut présenter des variations importantes d'un point à un autre de cette zone. Toutefois, l'interpolation entre les stations périphériques est légitime et conduit à une valeur très voisine de celle qui serait effectivement trouvée au centre de cette zone.

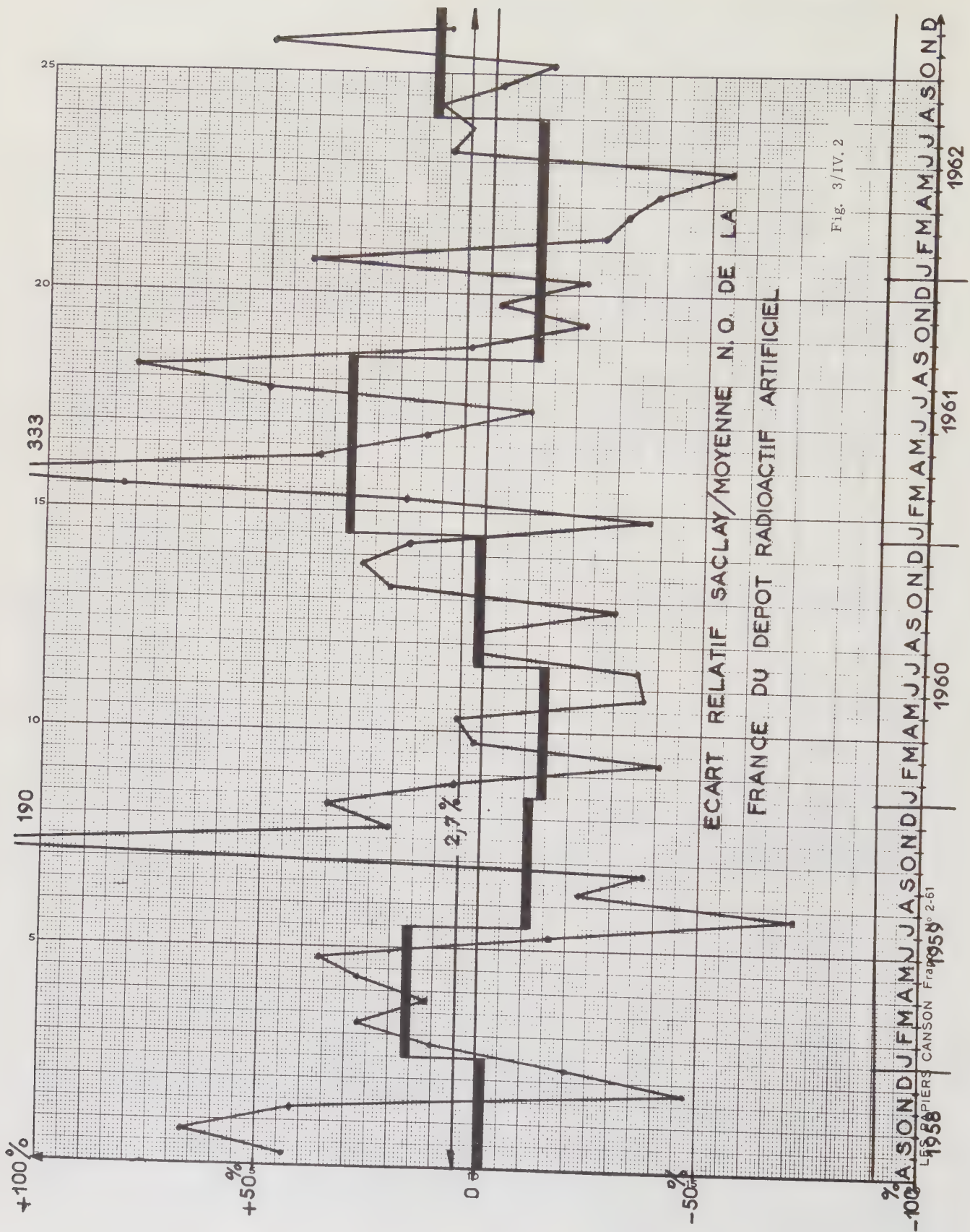


Fig. 3/IV.2

4/ Les fluctuations du dépôt étant purement aléatoires, la multiplication des stations de mesures dans une région limitée permet d'obtenir une valeur de ce dépôt statistiquement représentative, un mois donné. Si les dimensions de la région sont suffisamment importantes pour que des variations systématiques puissent s'y rencontrer, la valeur moyenne ainsi définie, un mois donné, est valable pour la partie centrale de la région considérée.

IV - 2/2 - COLLECTION DES RETOMBÉES SECHES PAR LE CRAPAL

IV - 2/2, 1 - On appelle "retombées sèches" le dépôt des débris radioactifs en absence de précipitations. Par extension, nous appellerons également "retombées sèches", celles qui se seraient produites en absence de précipitations, et qui, si ces précipitations se produisent, contribuent alors au dépôt radioactif en général. Nous avons vu au chapitre IV - 1, que leur existence compliquait sensiblement le problème de la collection du dépôt radioactif artificiel, la plupart des collecteurs utilisés ayant été prévus essentiellement pour recueillir les eaux de pluie. Pourtant ces retombées sèches jouent certainement un rôle très important : dans les climats tempérés, on a pu estimer leur contribution à 30 % du dépôt total /A2/, mesure effectuée par comparaison entre les concentrations en strontium 90 des pluies recueillies, et l'activité accumulée par le sol. Toutefois, cette estimation est assez sujette à caution, en raison de la difficulté d'estimer quel a été le taux de nettoyage du sol (par la circulation d'eau ou par l'intermédiaire de la végétation) durant la période de référence. De plus, dans les régions désertiques ou subdésertiques, la contribution des retombées sèches est à fortiori la plus importante !

IV - 2/2, 2 - Nous avons vu que le Crapal était prévu pour capter les deux formes de dépôt. Nous allons donc analyser les résultats obtenus pour déterminer l'importance des retombées sèches.

Si l'on mesure jour par jour le dépôt radioactif, au moyen d'un Crapal, en absence de précipitations on collectera plus de 1 jour sur 2 (en France) uniquement des retombées sèches. On peut ainsi déterminer, pour certaines périodes un taux quotidien de retombées sèches. Aucune raison ne permet de penser que ce taux soit très différent les jours de pluie : nous avons vu en effet que la concentration atmosphérique des aérosols radioactifs artificiels n'était pas directement affectée par la présence des précipitations : d'autre part, les mécanismes qui donnent naissance au dépôt sec ne varient probablement pas beaucoup les jours de pluie (bien que la vitesse du vent puisse être un peu plus faible en moyenne). On peut donc admettre que les mêmes retombées sèches se produisent, en moyenne, les jours où l'on observe des précipitations. Il est alors possible de calculer les parts relatives des retombées sèches et humides. Ce calcul a été effectué pour diverses périodes dans les stations de Saclay et de Thonon-les-Bains (Haute Savoie). Les résultats sont résumés dans le tableau V, ci-dessous :

TABLEAU V
Contributions relatives des retombées sèches (en %)

Période considérée	Saclay	Thonon
Octobre 1961	16 %	24 %
Novembre - Décembre 1961	55 %	46 %
1962 (sauf Août)	68 %	-

On voit que de très importantes fluctuations peuvent se produire d'une période à l'autre, encore qu'un assez bon accord semble exister entre deux stations distantes de près de 500 km. Bien que les pourcentages trouvés soient probablement un peu trop forts, cette estimation montre que les retombées sèches apportent une contribution importante au dépôt radioactif artificiel, probablement comprise entre 20 et 50 %, dans les climats tempérés.

La granulométrie des aérosols radioactifs artificiels ayant tendance à diminuer, au cours des premiers mois qui suivent une série d'explosions, il est probable que les chiffres valables pour les produits de fission à longue période sont sensiblement plus faibles.

IV - 2/2, 3 - Si l'on divise la radioactivité collectée pendant un jour sur une surface de 1 m² par l'activité moyenne de l'air le même jour, on obtient un nombre ayant les dimensions d'une lon-

gueur. En supposant constante la concentration de l'atmosphère, et si nous admettions que les retombées sèches découlent de la décantation naturelle des poussières sous l'effet de la pesanteur, cette longueur ne serait autre que la hauteur moyenne de chute des particules radioactives en un jour. Les calculs conduisent, en absence de toute précipitation, à des valeurs extrêmement variables pour cette hauteur de décantation : elle est comprise entre 150 et 6 500 m/jour. La valeur moyenne, établie sur quelques mois entre Septembre 1961 et fin Mai 1962 est de 1 300 m/jour. Si nous nous reportons au tableau I de la Première Partie, nous voyons que cette hauteur correspond environ à la chute en un jour de particules de plomb d'un diamètre supérieur à 10μ . On doit bien admettre que la collection des retombées sèches par le Crapal ne s'opère pas par gravité.

IV - 2/2.4 - On peut supposer que les masses d'air, au cours de leurs mouvements abandonnent une partie des poussières qu'elles contiennent sur différents obstacles tels que les collecteurs de dépôt radioactif. Dans le but de préciser ce phénomène nous avons placé côte à côte, dans un espace bien dégagé des collecteurs de surface identique mais orientés différemment (voir figures 4 et 5). Les collecteurs A, B et C sont constitués par des Crapals dont on a enlevé le réservoir et qui sont orientés dans trois directions perpendiculaires, l'axe de C étant vertical et celui de A horizontal et Nord-Sud. Le collecteur D est un Crapal normal. Le collecteur E est un Crapal dont la couronne a une hauteur six fois plus grande (60 cm au lieu de 10 cm). Le centre des ouvertures de tous ces collecteurs est à la hauteur standard de 1 m au dessus du sol. L'expérience a duré du 7 Novembre au 14 Décembre 1961. Les résultats en sont résumés au tableau VI, ci-dessous :

TABLEAU VI
Activités recueillies (en impulsions par minute)

Collecteur	Dépôt radioactif total	Retombées sèches
A (axe N - S)	31 334	6 722
B (axe E - O)	21 130	6 572
C (axe vertical)	14 060	3 136
D (Crapal ordinaire)	7 101	1 610
E (Crapal avec couronne de 0,6 m)	6 644	1 358

Les retombées collectées par E sont celles qui sont susceptibles de décanter dans l'atmosphère relativement calme qui règne à l'intérieur de la couronne. On voit que si ces retombées sont accompagnées de précipitations, c'est-à-dire pour des particules lourdes, les collecteurs D et E sont équivalents. Il n'en est pas de même pour les retombées sèches : dans ce cas D collecte davantage ce qui nous indique d'une partie du dépôt est alors abandonné par les tourbillons d'air qui pénètrent dans le collecteur. Et de fait C qui peut être traversé sans difficulté par les tourbillons d'air collecte environ deux fois plus de retombées sèches que D. Ce coefficient 2 doit probablement être associé au fait que les tourbillons peuvent pénétrer dans le collecteur soit de haut en bas (comme c'est le cas pour D, soit de bas en haut. Nous avons vérifié cela à l'aide de fumées de chlorure de titane.

La comparaison avec A et B est encore plus curieuse : ces deux collecteurs sont très largement traversés par le vent et, en absence de précipitations agissent comme de véritables filtres, traversés par les mouvements naturels de l'air. Des calculs basés sur la direction et la vitesse moyenne du vent, ainsi que sur la connaissance de la concentration de l'air en aérosols radioactifs artificiels, nous ont conduit à adopter la valeur approximative de 5 %, pour le rendement de collection du filtre en "gaze chirurgicale", chiffre confirmé par la suite (voir chapitre III - 1).

Notons que même en présence de précipitations, A et B collectent au moins deux fois plus que C ce qui illustre le fait que la pluie tombe très obliquement. La tangente de l'angle qu'elle fait avec l'horizontale valant ainsi au plus $1/2$ nous voyons que cet angle est en moyenne nettement inférieur à 30° . La turbulence verticale affecte donc certainement la chute de la pluie, ce qui explique que C collecte deux fois plus de dépôt que D et E, également lorsqu'il s'agit de retombées humides (cf. tableau VI).

Ces différentes observations nous permettent de conclure que, ce que nous avons appelé "retombées sèches" est en réalité constitué par le dépôt des aérosols, par diffusion, ou par impact,

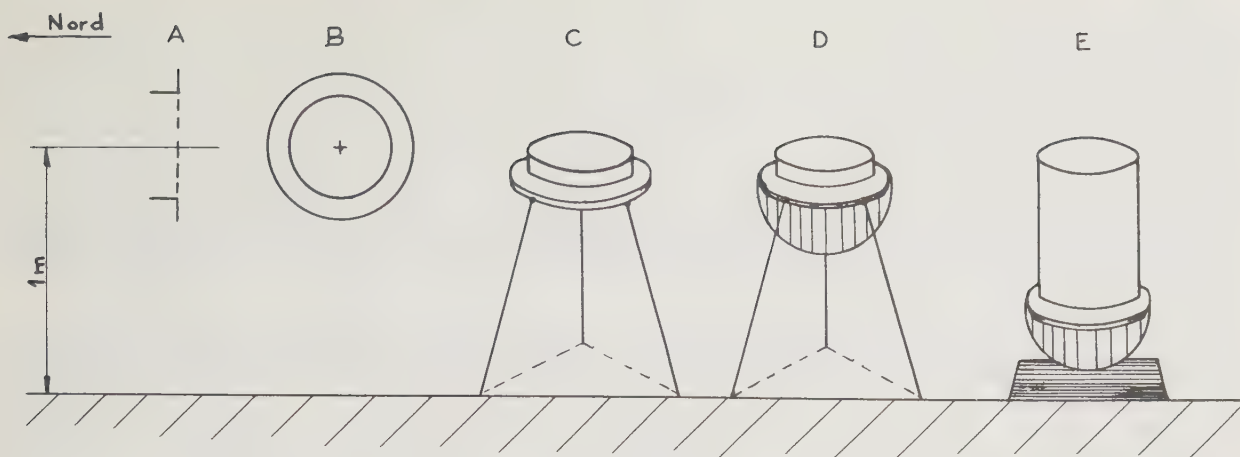


Fig. 4/IV. 2



Figure 5/IV. 2

à partir de petits tourbillons qui se produisent au voisinage des obstacles placés dans un courant d'air naturel. Les différentes formes de végétation constituent de tels obstacles et doivent ainsi collecter des débris radioactifs, en absence de toute précipitation. Ainsi des feuilles d'arbustes et différentes espèces de végétaux, soigneusement lavées puis exposées 24 heures de l'atmosphère libre abandonnent ensuite, par simple lavage à l'eau distillée, d'importantes quantités de produits de fission. Pour un rameau de "Troënes", de 30 cm de long, par exemple, on trouve ainsi des activités de 10 à 40 pCi recueillies par jour. L'estimation quantitative de ce dépôt est rendue difficile par les variations de section efficace de filtration et de pouvoir de rétention des différentes espèces végétales. Il n'en reste pas moins que cette autofiltration de l'air sur les obstacles naturels doit être un moyen très efficace de nettoyage de l'atmosphère qui s'ajoute à l'effet des précipitations et complique ainsi considérablement l'évaluation des quantités de débris radioactifs *effectivement déposés* à la surface du globe.

Une première étude a consisté à comparer au pouvoir filtrant du Crapal ordinaire, pris arbitrairement comme unité, l'efficacité de différents collecteurs. Les résultats suivants ont été obtenus :

TABLEAU VII

Efficacité relative de différents collecteurs vis-à-vis des retombées sèches

Collecteurs	Efficacité relative
Crapal ordinaire	100 % (par hypothèse)
Crapal avec couronne de 60 cm	62 %
Crapal démuné de gaze	54 %
Crapal où la gaze est remplacée par un plan d'eau	42 %

IV - 2/2.5 - Le problème qui se pose, au vu du tableau VII, est de savoir lequel de ces collecteurs se rapproche le plus de l'efficacité de la surface moyenne du sol. Une semblable étude nécessite une bonne connaissance du comportement des retombées radioactives après leur dépôt à la surface du sol. Cette étude est en général difficile et très spécialisée. Nous n'avons donc entrepris ces comparaisons, en collaboration avec R. Chesselet et D. Nordemann, dans le cas particulier de plans d'eau de grandes dimensions (cas très différent de celui du dernier collecteur figurant au tableau VII).

Premier cas - On a comparé aux retombées radioactives collectées par un Crapal, à Thonon-les-Bains, la quantité de débris accumulés dans le Lac Lemman, mesurée à partir de prélèvements effectués chaque jour, ou chaque semaine, à différentes profondeurs. Les résultats sont les suivants :

Retombées β globales à Thonon : 0,54 Ci/km²
(correction de décroissance effectuée à la date du 30.10.62)

Chiffre déduit de l'étude du Lac au 30.10.62 : 450 Ci

Cela conduit à admettre pour le Lac Lemman un bassin de collection de 850 km² environ, légèrement supérieur à sa surface réelle de 582 km², en accord avec certaines observations limnologiques /C5/.

Deuxième cas - On a comparé au chiffre moyen du zirconium 95 en équilibre avec le niobium 95 accumulé au 1er Juillet 1962, dans les différentes stations méditerranéennes équipées de Crapal*, la concentration mesurée en différents points du bassin méditerranéen occidental par spectrométrie γ "in situ" /C2/. Les chiffres obtenus sont les suivants /C4/ /C6/ :

Retombées en Zr-Nb 95 sur la Méditerranée occidentale : 0,2 Ci/km²

Chiffre déduit de la concentration de l'eau de mer : 0,187 Ci/km²

Dans les deux cas envisagés, l'excellente concordance des résultats obtenus nous incite à penser que le Crapal, tel que nous l'avons décrit au chapitre IV - 1, correspond assez bien au pouvoir collecteur des océans ou des grands plans d'eau et ne doit pas différer beaucoup de celui d'un sol recouvert par la végétation.

* Il s'agit des stations de Monaco, Nice, Marignane, Ajaccio, Alger.

IV - 2/3 - NETTOYAGE DE LA TROPOSPHERE PAR LES PRECIPITATIONS

IV - 2/3.1 - Etant donné l'importance des retombées sèches, et des fluctuations aléatoires dans les retombées radioactives, on conçoit qu'il est difficile d'étudier directement l'apport de débris radioactifs par l'intermédiaire des précipitations. La durée des précipitations est toutefois, en général, très inférieure à la journée, si bien que l'on peut, en première approximation, négliger les retombées sèches qui se produisent pendant ce temps.

Certains collecteurs ont été conçus spécialement pour recueillir les retombées qui accompagnent les précipitations. Ils possèdent par exemple un système de fermeture, ou de renversement qui, à la première goutte de pluie, se déclenche automatiquement. Un observateur attentif peut évidemment remplacer ce mécanisme.

Les études des précipitations individuelles et de leurs diverses fractions se sont révélées décevantes : les premières gouttes de pluie sont en général un peu plus concentrées en débris radioactifs, mais ensuite les variations de la concentration en fonction du temps ne semblent ni simples ni même reproductibles. Ceci illustre bien le fait que seules quelques particules de gros diamètre peuvent être capturées par les gouttes de pluie, et que la concentration de l'atmosphère en aérosols radioactifs artificiels n'en est pratiquement pas affectée.

IV - 2/3.2 - Influence de la pluviométrie sur l'intensité des retombées radioactives.

IV - 2/3.2.1 - Un premier examen de l'influence de la pluviométrie peut être effectué en faisant figurer l'ensemble des données métropolitaines pour toutes les stations, et mois par mois, de Septembre 1958 à Septembre 1960, sur un graphique (figure 6) portant, en abscisse, la hauteur d'eau des précipitations (en mm), et en ordonnée, l'activité spécifique β par unité de volume (en 10^{-12} curie/cm³ d'eau) /G5/.

L'ensemble de ces résultats (figure 6) reste difficilement intelligible, et une seule conclusion peut en être tirée : l'enveloppe d'allure hyperbolique des points signifie qu'une activité totale donnée n'a jamais été dépassée. Il convient de noter de plus sur ce graphique :

- Le grand nombre de points pour lesquels une précipitation abondante n'a pas exclu une activité spécifique importante.
- La grande concentration de points correspondant à une activité très faible (accumulés depuis le milieu de 1959).
- L'existence de quelques prélèvements d'activité spécifique tendant vers l'infini, lorsque les précipitations du mois ont été très faibles (retombées sèches).

Les mêmes graphiques, repris mois par mois, pour les 18 stations françaises métropolitaines, laissent au contraire, apercevoir des répartitions beaucoup plus significatives et ordonnées. Pour mieux les étudier nous allons passer en revue les différents modes possibles de concentration de produits de fission par la pluie.

IV - 2/3.2.2 - Différents modes possibles de contamination de l'eau de pluie.

Même dans les cas où une tendance générale se dégage, l'ordre ne peut évidemment être que très relatif ; même si nous avons affaire à des mécanismes d'apports des aérosols uniques et parfaitement déterminés, les résultats expérimentaux seraient forcément altérés par d'autres processus météorologiques qui, à priori, ne leur sont pas directement corrélés et la détermination des lois d'apport ne pourra se faire que par compilation systématique et statistique de l'ensemble des données.

On peut distinguer quatre modes de regroupement possible des points expérimentaux (figure 7).

1° - *Apport homogène* - Si les aérosols radioactifs suivent les mêmes lois de condensation en nuages que la vapeur d'eau, le rapport K des taux de condensation étant constant, la concentration spécifique de l'eau de pluie en débris radioactifs, r , sera constante quelle que soit la pluviométrie. Dans un diagramme faisant figurer la concentration spécifique en fonction de la pluviométrie, les points représentatifs seront groupés autour d'une droite horizontale. Une modification de l'activité spécifique pourrait signifier, soit que le processus régissant l'apport radioactif n'est pas uniquement celui qui est décrit, soit que le nuage provient d'une région où le rapport K n'est pas le même et, connaissant par exemple, l'anisotropie mondiale d'activité en fonction de la latitude, on pourra estimer les déplacements de la zone de formation des nuages, dont les condensations se déversent sur la France.

Ce cas de répartition homogène implique d'autre part un apport de retombées sèches R_s négligeable par rapport à l'activité amenée par la pluie. S'il n'en était pas ainsi nous aurions, non

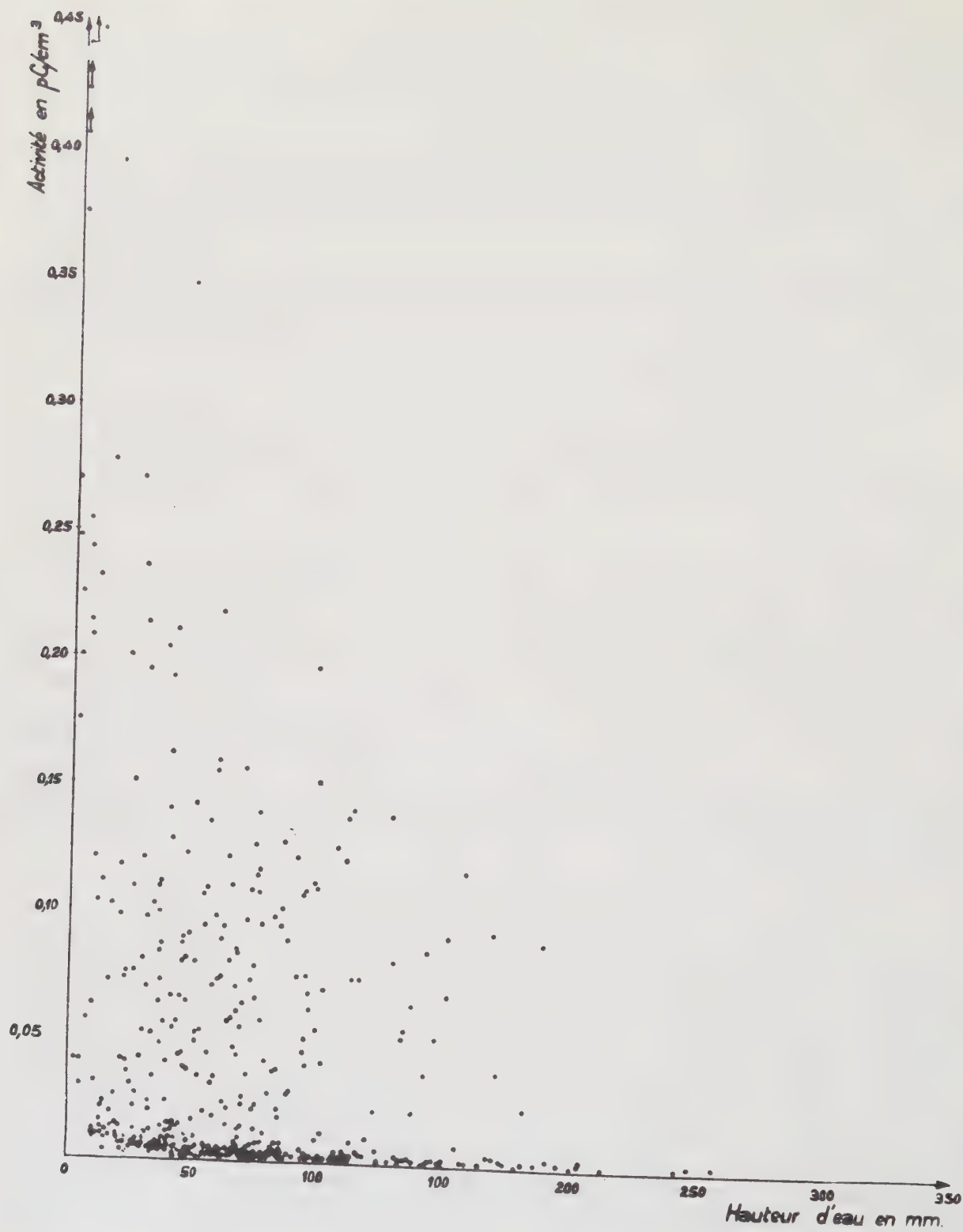
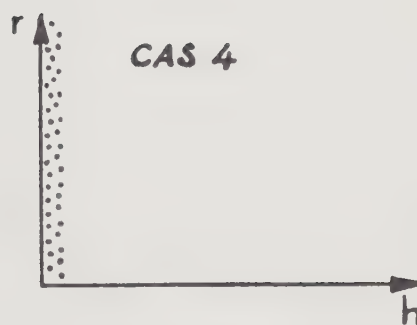
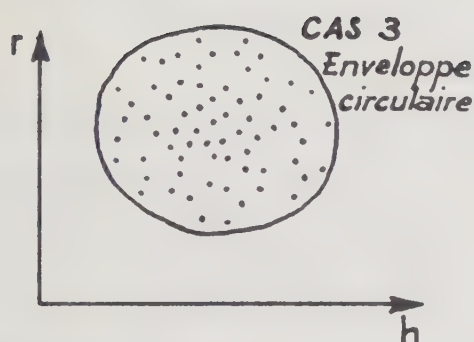
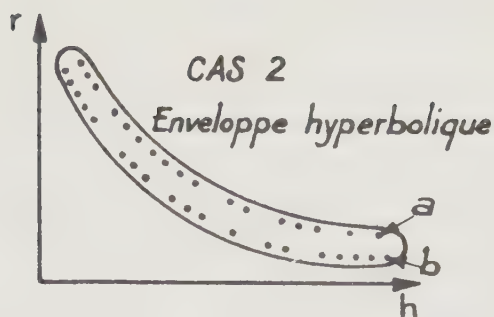
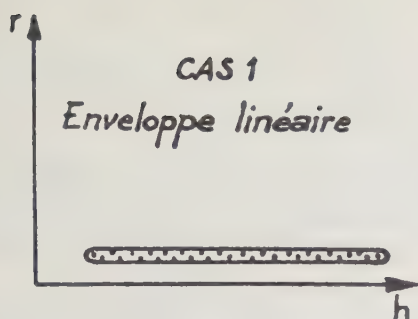


Fig. 6/IV.2 - Radioactivité β des précipitations (de septembre 1958 à septembre 1960) (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).



En abscisse : hauteur de pluie ; en ordonnée : activité spécifique. Ici l'alignement sur deux hyperboles correspondrait à deux groupes de stations situés sur deux latitudes a et b de radioactivité moyenne différente.

Fig. 7/IV. 2 - Répartition théorique des stations selon les différents régimes (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).

plus une répartition des points expérimentaux le long d'une droite d'activité spécifique constante, mais le long d'une courbe d'équation :

$$r = K + \frac{R_s}{h}$$

La répartition des stations présentera alors l'aspect d'une droite horizontale se relevant hyperboliquement dans la région des faibles pluviométries. Si ce deuxième terme n'est pas négligeable mais au contraire dominant, nous aurons le deuxième cas.

2° - *Apport constant* - Si les retombées sèches dominent, ou si la contamination et le lessivage de la troposphère sont tels que tous les débris radioactifs présents au-dessus d'une région soient collectés par les précipitations, la quantité d'eau précipitée devient alors indifférente et, l'activité R amenée au sol en un mois, sera approximativement constante. On a alors une répartition des points expérimentaux sur la branche hyperbolique

$$r = \frac{R}{h}$$

Si plusieurs valeurs de R peuvent exister (par exemple pour des stations situées à des latitudes différentes), on aura plusieurs branches hyperboliques possibles et l'enveloppe des points expérimentaux aura une allure grossièrement hyperbolique.

Si la valeur de R est suffisamment faible, on retrouve le cas particulier mentionné dans le premier cas (points répartis au voisinage de l'axe des abscisses, mais se relevant légèrement lorsque la pluviométrie devient très faible).

3° - *Répartition des aérosols radioactifs irrégulière et indépendante des condensations* - Si l'apport des aérosols n'est en rien corrélé à l'apport des pluies et s'il ne présente aucune régularité apparente nous ne pourrions avoir qu'une répartition quelconque des points sur les graphiques puisque les deux paramètres r et h varient aléatoirement. L'enveloppe des points présente alors une forme grossièrement circulaire.

4° - *Retombée irrégulière sèche* - Dans le cas où les précipitations ont été particulièrement faibles pendant le mois dans toutes les stations, aucun point représentatif ne s'éloigne de l'axe des ordonnées. Si de plus, les retombées sèches sont irrégulières, on a une répartition aléatoire des points le long de cet axe.

Remarquons que ce cas est le seul où l'on puisse avoir groupement des points sur une parallèle à l'axe des ordonnées, l'uniformité des hauteurs de précipitations sur toutes les stations métropolitaines françaises ne paraissant possibles que si ces précipitations sont partout inexistantes.

IV - 2/3. 2. 3 - Examen des données statistiques des stations métropolitaines.

Nos mesures systématiques commencent en Août 1958.

Les graphiques relatifs aux mois d'Août et Septembre montrent une répartition de l'activité à peu près homogène (Cas 1). L'activité spécifique moyenne décroît et passe de 0,04 à 0,03. 10⁻¹² Ci/m³.

Au mois d'Octobre la répartition cesse d'être homogène, des apports nouveaux apparaissent ; ils doivent provenir des expériences effectuées dans l'hémisphère boréal ; en effet, ils donnent lieu à une branche hyperbolique, donc sont irréguliers et uniformes quand à leur répartition. Le régime 2 qui apparaît ainsi reste néanmoins mal défini : la branche de l'hyperbole est large, des arrivées irrégulières pouvant provenir des essais soviétiques et américains du mois de Septembre. L'arrivée massive des produits de ces explosions va être précipitée pendant les six mois qui suivent.

L'activité générale augmente d'Octobre 1958 à Janvier 1959 (figure 8) en même temps que l'on passe dans le régime d'une distribution irrégulière de l'activité (Cas 1) puis à une distribution irrégulière sèche au mois de Février (figure 9).

Au mois de Mars (figure 10), l'enveloppe des points prend une forme hyperbolique avec apport maximum de radioactivité au voisinage du 44ème parallèle. En Avril et Mai l'écart latéral entre les stations de même pluviométrie, c'est-à-dire la largeur de la branche hyperbolique, est du même ordre que l'abscisse moyenne de celle-ci ; on peut dire que la moitié des retombées radioactives passe ainsi dans une répartition régulière indépendante des précipitations (Cas 2), alors que l'autre moitié n'est pas encore mélangée complètement et obéit à une distribution irrégulière (Cas 3).

En Avril, la largeur de la branche hyperbolique est tellement grande que son existence même peut être mise en doute. De nombreux points se situent sur une parallèle à l'axe des hauteurs d'eau (à 0,11 pCi/cm³) et désigneraient un régime de type homogène (Cas 1) rejoignant le régime des apports réguliers, mais indépendant des précipitations. Ce cas 2 hyperbolique va dominer tous les autres modes à partir du mois de Mai jusqu'en Juillet.

L'activité moyenne va décroître, l'hyperbole s'approche des axes, le mélange devient de plus en plus régulier ; au lieu d'un domaine hyperbolique comme en Mai, en Juillet on a vraiment une courbe. Il est remarquable de voir comment, en fonction de la pluviométrie mensuelle, les stations se déplacent le long de l'hyperbole, selon que les retombées radioactives régulières sont plus ou moins diluées ; le cas de Dijon (n° 8) est typique : de la branche basse de l'hyperbole en Mai, on le trouve en haut en Juin, pour le voir revenir à la pointe basse en Juillet. Amberieu (n° 11) subit des fluctuations analogues de moindre amplitude.

A partir de Juillet 1959, le régime de la répartition homogène (Cas 1) domine (figure 11). Un certain pourcentage d'aérosols continue néanmoins d'arriver, indépendamment des concentrations de nuages ; il se laisse voir quand les précipitations pluvieuses sont faibles, par un décrochage hyperbolique au débit d'une droite horizontale, dont l'horizontalité s'affirme dans la mesure même où cette contribution diminue, d'Août à Octobre.

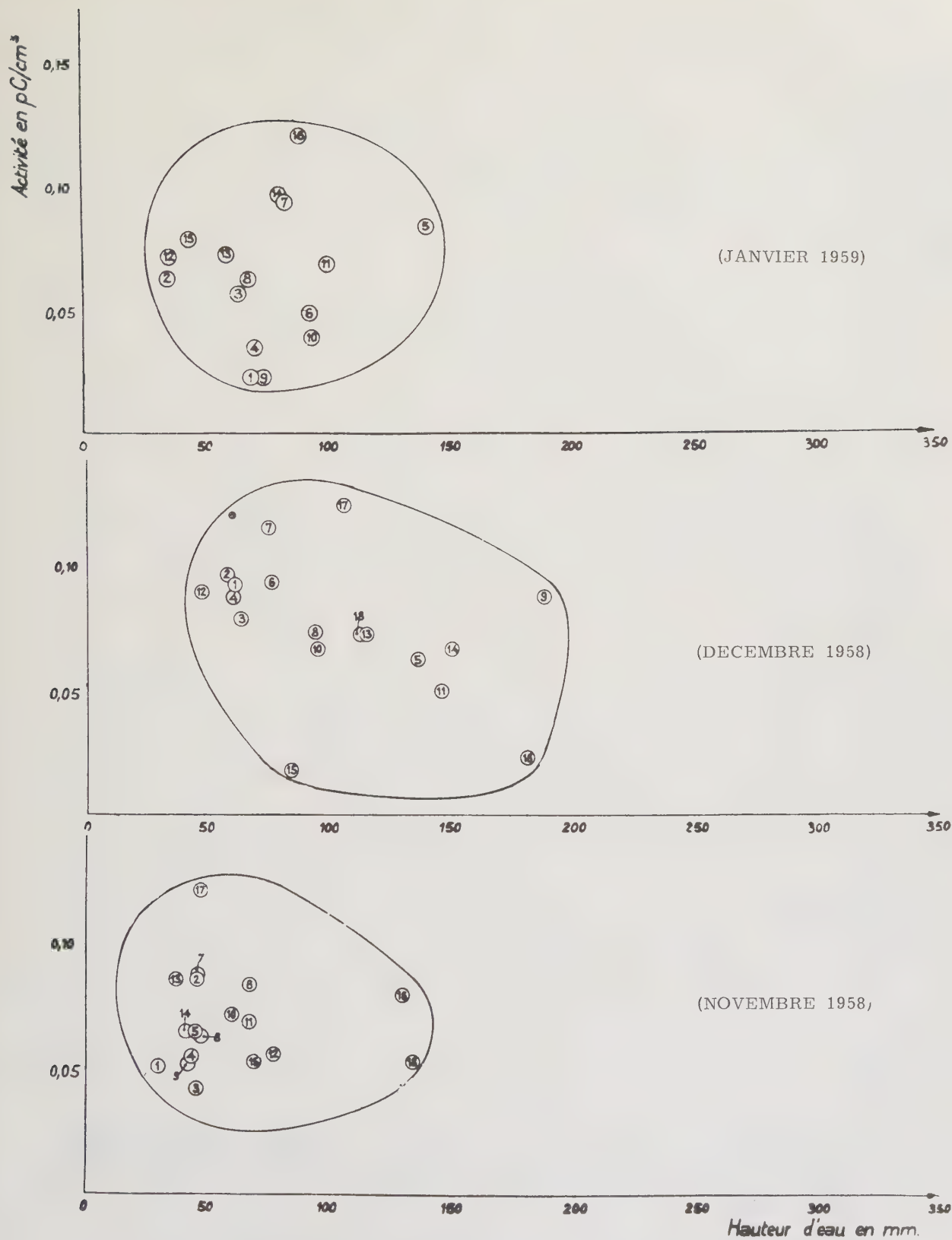


Fig. 8/IV.2 - Radioactivité β des précipitations (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).

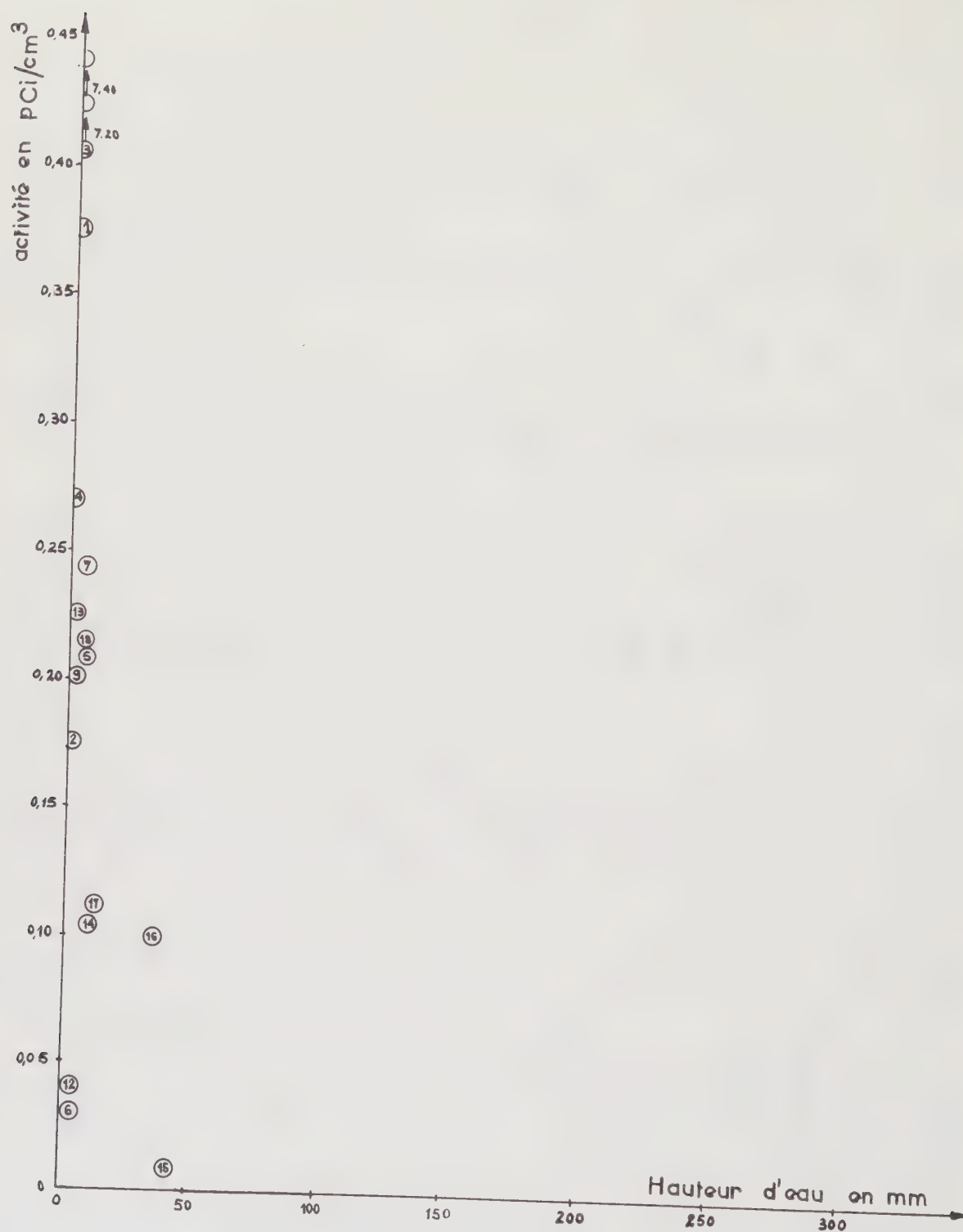


Fig. 9/IV.2 - Radioactivité β des précipitations (Février 1959) (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).

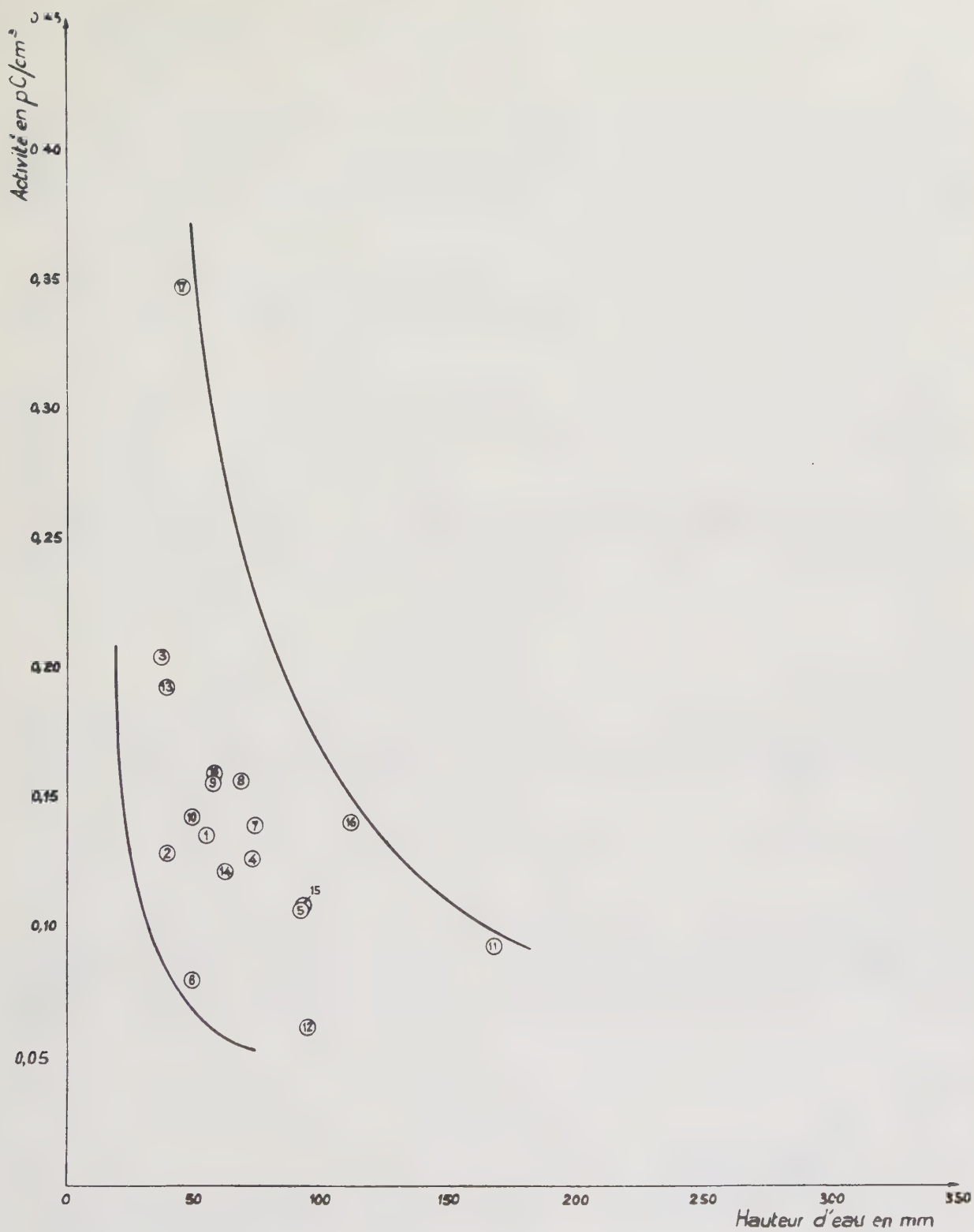


Fig. 10/IV.2 - Radioactivité β des précipitations (Mars 1959) (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).

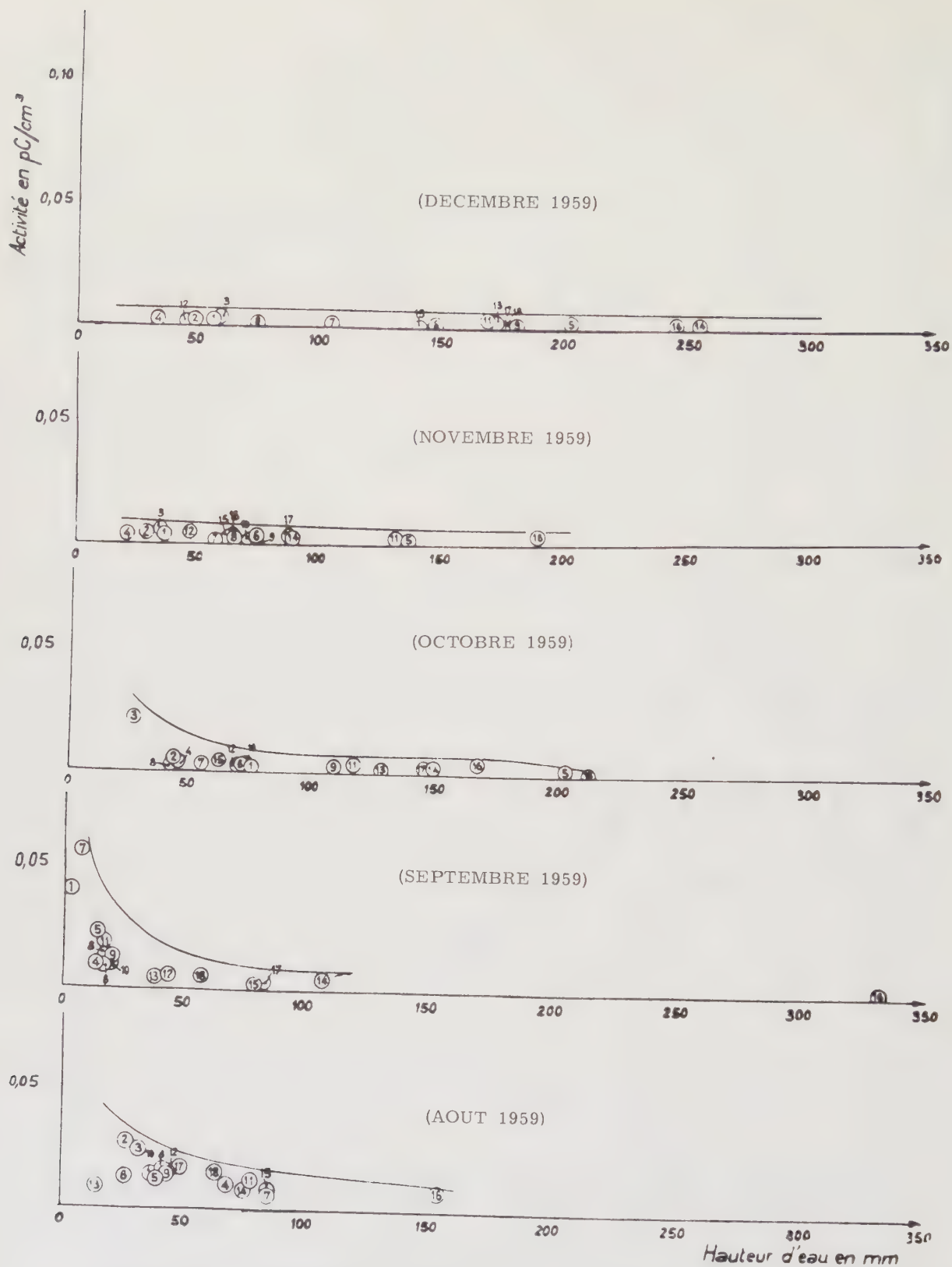


Fig. 11/IV.2 - Radioactivité β des précipitations (T. Grjebine, G. Lambert /G5/).

En Novembre (figure 11) les arrivées indépendantes d'aérosols disparaissent complètement : seule, subsiste la répartition homogène. Désormais, et ceci jusqu'aux récentes expériences françaises, il faudra expliquer les écarts éventuels de l'activité spécifique par des phénomènes autres que ceux envisagés ici.

Au mois de Février 1960 des résultats très différents sont obtenus, à la suite de l'explosion nucléaire du 13 Février (Reggane). En particulier, un nuage de produits de fission survole la France dans les derniers jours du mois apportant une quantité relativement constante de produits radioactifs sur les diverses stations sous forme de retombées sèches insolubles. Cette radioactivité est assez importante pour dissimuler la répartition régulière, des produits anciens et son indépendance vis-à-vis de la pluviométrie se traduit par une courbe de répartition d'allure hyperbolique, quelques stations émergeant par suite de phénomènes atmosphériques locaux (Clermont-Ferrand).

Dès le mois de Mars 1960 la rapide décroissance des aérosols en provenance de Reggane diminue leur influence perturbatrice et l'on retrouve le régime régulier faible des mois précédents. Ce régime se poursuit au cours des mois suivants, les points représentatifs étant répartis aléatoirement au voisinage immédiat de l'axe des abscisses.

A partir de Septembre 1961, la radioactivité déposée sur le sol redevient importante. Une évolution assez parallèle à celle que nous avons décrite va être observée : répartition irrégulière en Septembre (figure 12) Octobre 1961 et apparition d'une structure hyperbolique à partir de Décembre 1961, particulièrement bien marqués en Mars 1962 (figure 13). En Mai (figure 14) la répartition redevient irrégulière, et la décroissance radioactive plus rapide indique la présence de débris très jeunes. Ceux-ci proviennent vraisemblablement des explosions américaines de Avril-Mai 1962. Nous avons décelé leur présence dans la stratosphère, où se forment les nuages. Ce rajeunissement a d'ailleurs été noté par Chesselet et Nordemann dans les eaux du Lac Lemman /C5/.

En Juin et Juillet 1962 (figure 15), la structure reste irrégulière sèche, les hyperboles apparaissent à nouveau en Août, pour disparaître complètement en Octobre et Novembre (reprise des explosions dans l'hémisphère Nord). En Décembre (figure 16) il semble que l'on ait un mélange de plusieurs régimes, faisant apparaître une structure hyperbolique.

IV - 2/3. 2.4 - Cette étude nous permet donc de tirer quelques conclusions sur les processus d'apport de la radioactivité dans les retombées.

a) Immédiatement après une explosion nucléaire, des arrivées massives d'aérosols radioactifs provoquent une augmentation sensible de la radioactivité des retombées. La loi de répartition est alors soit irrégulière, si l'apport se fait par l'intermédiaire d'une précipitation, soit indépendante dans le cas des retombées sèches, intenses mais de courtes durées.

b) Quand la répartition des aérosols devient uniforme, on peut toujours appliquer la description précédente, mais nous trouverons alors une répartition hyperbolique.

c) Ce premier nettoyage de la troposphère a duré 5 mois en 1958-1959, durée tout à fait compatible avec les évaluations du temps moyen de nettoyage de la troposphère que nous avons rappelées dans la Première Partie.

d) Après ce nettoyage de la basse atmosphère, les précipitations ne peuvent amener au sol que la quantité de radioactivité qui leur parvient, par exemple, à travers la tropopause. La quantité totale de radioactivité est alors imposée et captée par les nuages, probablement lors de leur formation puis précipitée proportionnellement au volume d'eau : le régime homogène est obtenu. Ce régime ne devrait guère apparaître avant Juin 1963, en absence de nouvelles explosions, bien entendu.



Fig. 12/IV. 2 - Diagramme des retombées en septembre 1961.

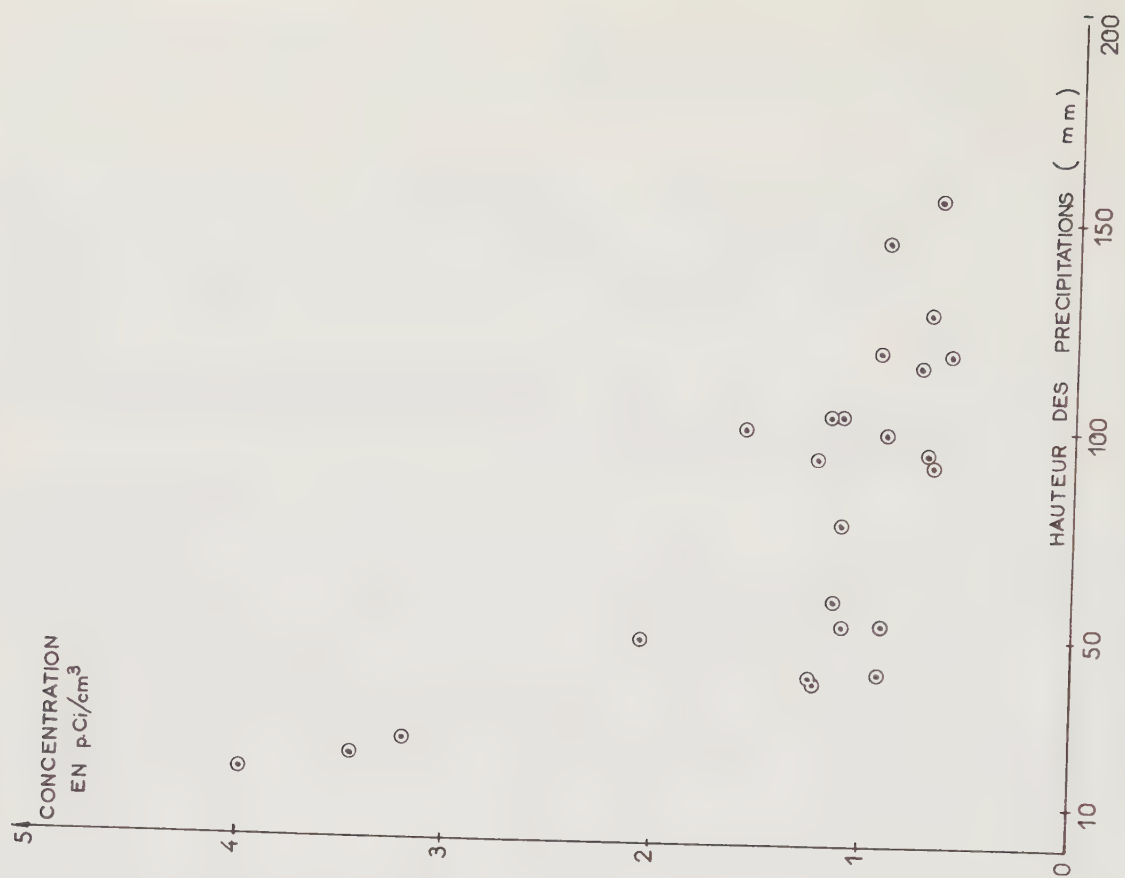


Fig. 13/IV. 2 - Diagramme des retombées en mars 1962.

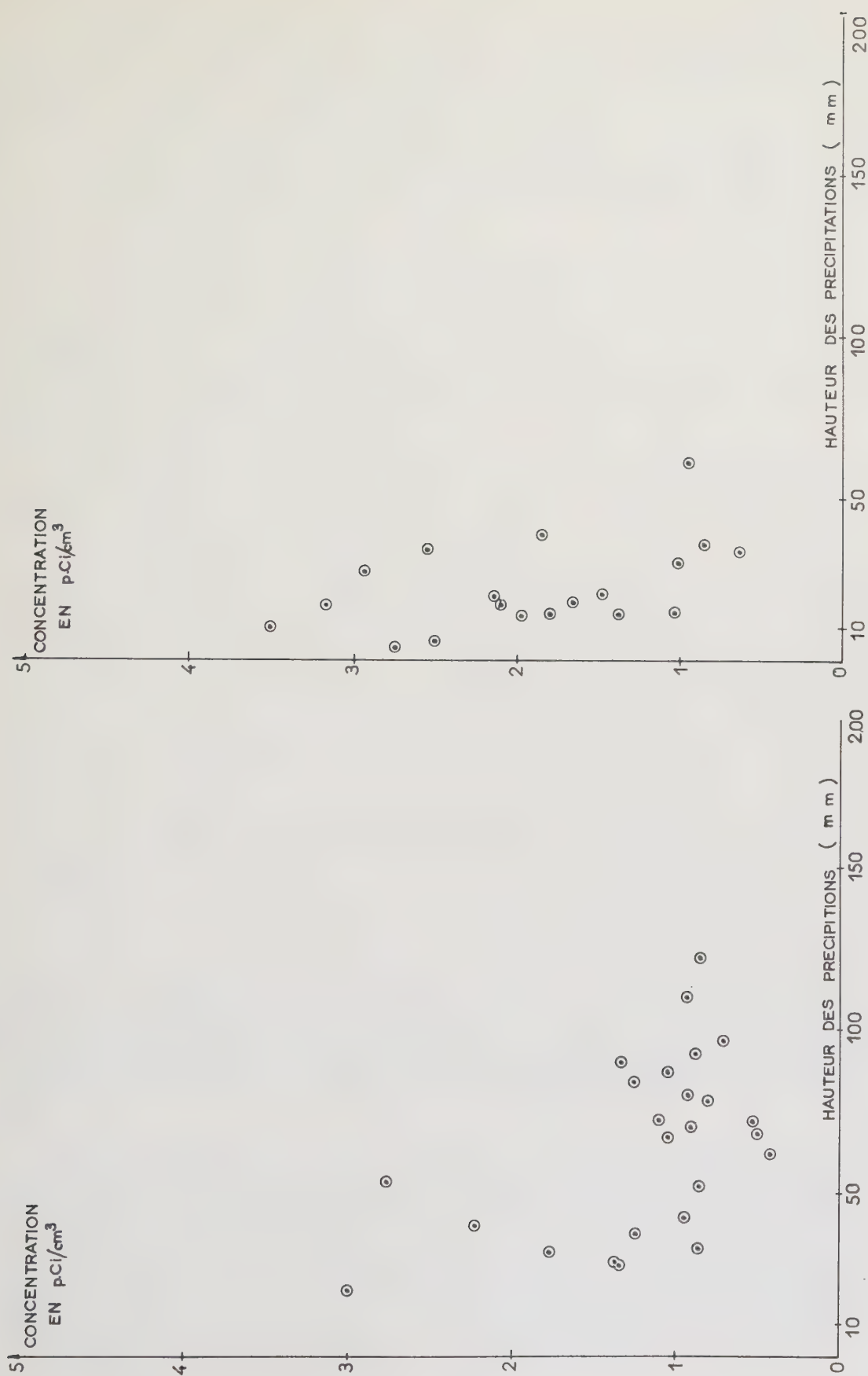


Fig. 14/IV.2 - Diagramme des retombées en mai 1962.

Fig. 15/IV.2 - Diagramme des retombées en juin 1962.

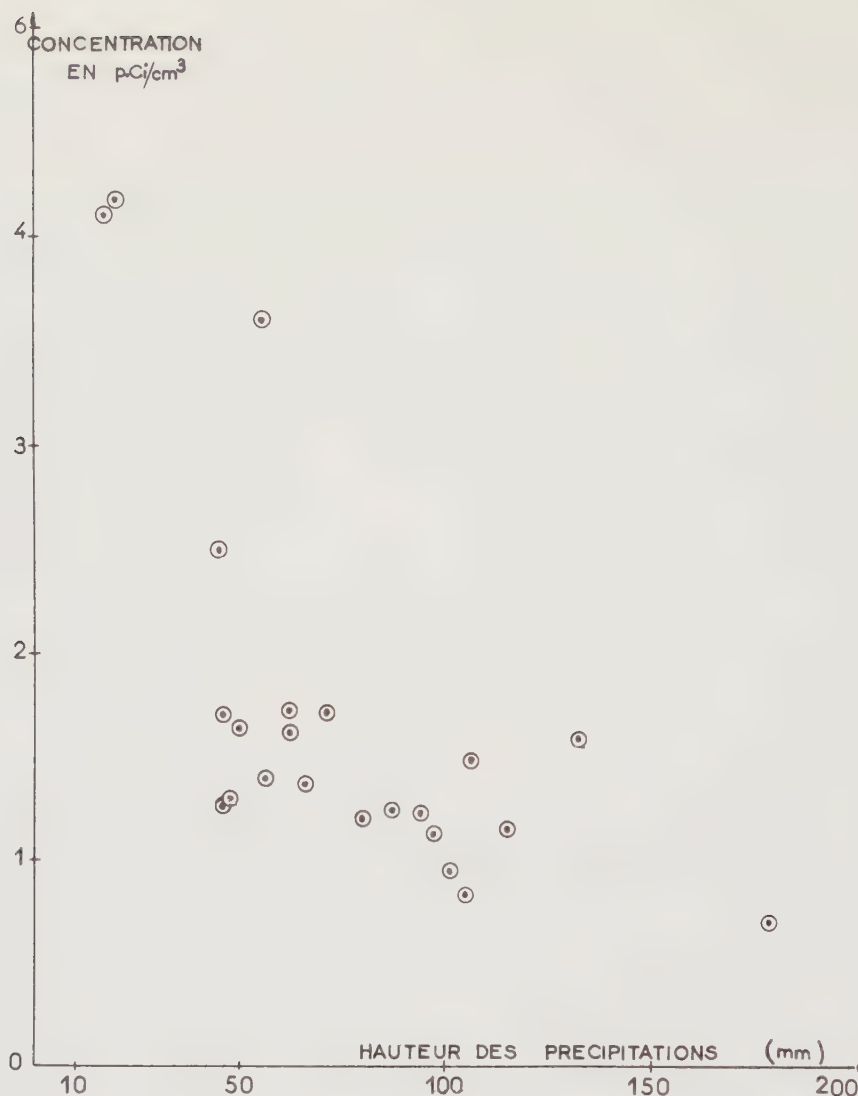


Fig. 16/IV.2 - Diagramme des retombées en décembre 1962.

IV - 2/4 - VALEUR STATISTIQUE DU RESEAU CRAPAL FRANCAIS

IV - 2/4.1 - Les études qui précèdent nous ont renseignés sur les principales caractéristiques du dépôt des débris radioactifs artificiels à la surface du sol, ainsi que sur le comportement du Crapal à leur égard. S'il n'est pas douteux que, à long terme, ce collecteur est représentatif d'une région climatique donnée, et si la multiplication des Crapals dans une telle région permet d'intégrer les fluctuations aléatoires, à l'échelle du mois, par contre le bilan des retombées radioactives et à fortiori du taux mensuel de déposition, dans une zone plus vaste, au climat diversifié, paraît bien plus difficile.

Par suite de sa superficie de l'ordre du millième de celle de la Terre et de son climat fortement diversifié bien que typiquement tempéré, la France peut être considérée comme une zone néanmoins relativement homogène, et l'étude de la validité de l'estimation des retombées radioactives y constitue un test intéressant.

Une détermination rigoureuse des retombées radioactives sur la France aurait exigé que le réseau de collection soit suffisamment dense pour être réellement représentatif de la totalité de sa superficie. Des raisons pratiques évidentes ont limité la surface de réception des collecteurs à 0,1 m² et leur nombre à 18, de Septembre 1958 à fin 1961 et progressivement de 19 à 26 au cours du premier semestre 1962. La répartition géographique des stations est indiquée au chapitre IV - 1, figure 6.

Les radioéléments solubles et insolubles ont été récoltés mois par mois ce qui ne permet pas d'étudier la répartition, dans l'espace et le temps, des retombées, en fonction des situations météorologiques, mais permet, en intégrant les variations quotidiennes, d'avoir une représentation moins hétérogène. Le problème qui se pose est donc de déterminer si, à l'échelle du mois, la connaissance des résultats de 18 stations permet d'évaluer les retombées sur la France entière pendant le mois considéré, sans faire intervenir de données physiques ou météorologiques supplémentaires ; autrement dit, si la moyenne arithmétique des 18 valeurs numériques de retombées par unité de surface est ou non statistiquement représentative. Dans l'affirmative, la quantité totale de radioactivité artificielle, reçue au sol pendant un mois donné, s'obtient en multipliant cette valeur moyenne par la superficie de la France, soit environ $551 \times 10^3 \text{ km}^2$.

Il convient de noter que ce nombre de 18 stations est infime (moins de 1/150ème) par rapport à celui des postes climatologiques mesurant la hauteur des précipitations. De ce fait, si l'on connaissait une loi reliant l'abondance des précipitations et leur radioactivité volumique, on pourrait en déduire l'importance des retombées radioactives par unité de surface autour de chacun de ces postes pluviométriques, donc avec une validité bien plus grande que dans notre cas. Malheureusement, les études faites en vue de déterminer cette loi, ont montré, au contraire, que des répartitions très différentes pouvaient être rencontrées, particulièrement en période de forte activité, ce qui rend impraticable toute estimation de ce type. Ce problème est encore compliqué par l'existence des retombées sèches toujours difficiles à mesurer.

Deux méthodes développées en collaboration avec B. Guilmet /G8/ nous ont paru susceptibles de contrôler le degré de validité des évaluations faites à partir des moyennes arithmétiques, qui a priori, était difficilement acceptables. Chacune d'elles est exposée ci-après.

IV - 2/4.2 - Méthode des secteurs pluviométriques.

Cette méthode consiste à admettre que chaque station de collection est représentative d'une portion de territoire qu'elle est, théoriquement, supposée représenter sur le plan climatique et surtout pluviométrique. Or, sur ce dernier plan parmi les 18 stations, plusieurs ne sont effectivement représentatives que de régions très limitées ; c'est ainsi que : Rostrenen n'est susceptible de représenter que les Monts d'Arrée et les Montagnes Noires en Bretagne ; Clermont-Ferrand n'est valable que pour la Vallée de l'Allier ; Toulouse que pour la moyenne Garonne ; Strasbourg que pour la plaine d'Alsace ; Marignane que la Basse Provence ; enfin, qu'Ajaccio situé sur la côte Ouest n'est représentatif ni de la côte Est ni de l'intérieur de la Corse. En conséquence, les 18 secteurs pluviométriques de base correspondant aux 18 stations de mesures ne couvrant qu'une partie du territoire de la France, il fallait obligatoirement étendre la représentativité de certains secteurs en augmentant arbitrairement les seuils de pluviométrie. En ce faisant, on incluait dans certains secteurs un ou plusieurs des 18 secteurs de base et on réduisait en fin de compte le nombre de secteurs à 6 ou 8. L'activité totale de chaque secteur est alors le produit de l'activité moyenne des stations qui y sont situées (ou à défaut, d'une activité moyenne interpolée) par sa superficie en kilomètres carrés. La somme des activités totales des différents secteurs donne l'activité totale sur la France, ce qui permet d'obtenir la valeur de l'activité moyenne en millicuries/km² pour la France entière. Un exemple de ce découpage est donné figure 17, sur laquelle figure le découpage en secteurs, l'activité totale en curies de chaque secteur et l'activité moyenne du mois considéré en millicuries/km² pour la France entière.

Les résultats obtenus par cette méthode figurent aux tableaux VIII et IX ci-après, au-dessous des moyennes arithmétiques mensuelles respectivement pour les deux périodes Septembre 1958 - Août 1959 et Septembre 1961 - Avril 1962. La concordance est remarquable et laisse supposer que la moyenne arithmétique est statistiquement valable. Bien qu'elle donne des résultats inespérés, cette méthode conduit à des interprétations hasardeuses et dans bien des cas, il apparaît bien que la radioactivité n'a pas un rapport aussi étroit avec la pluviosité qu'on l'avait admis dans l'hypothèse initiale.

On notera que la méthode de calcul ainsi adoptée réduit sensiblement les activités dans les régions où se trouvent des stations de mesure à forte radioactivité et, inversement, les augmente dans d'autres apparemment de plus faible activité, mais de forte pluviosité. Ce résultat est normal, cette méthode de découpage ayant pour but, non pas de calculer les activités régionales sans doute mieux représentées par les mesures effectuées dans les stations les plus proches, mais au contraire, d'atteindre une valeur moyenne calculée pour l'ensemble de la France.

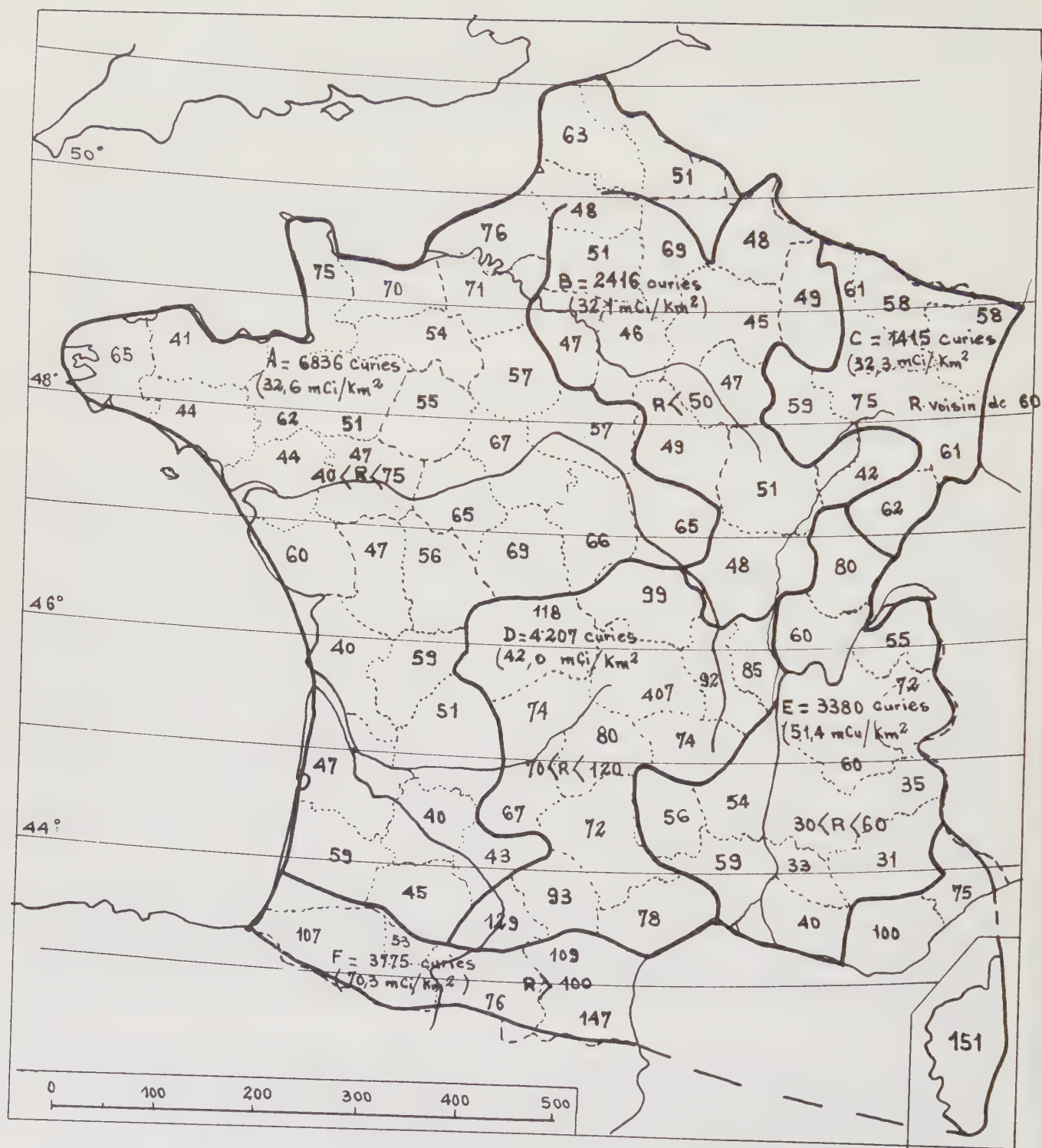


Fig. 17/IV.2 - Secteurs pluviométriques. Novembre 1958. Activité totale : 20022 Curies, soit 40 mCi/Km².

TABLEAU VIII

Activité superficielle β en millicuries par kilomètre carré
Moyennes pour l'ensemble de la France - Septembre 1958 à Août 1959

Mois	Moyennes arithmétiques des 18 stations	Moyennes calculées par la méthode des secteurs pluviométriques	Moyennes calculées par pluviométrie interisoline	Moyennes des trois valeurs	Ecart maximum en %
Septembre	21,0	21,4	21,4	21,3	1,4 %
Octobre	24,6	23,4	25,9	24,6	4,9 %
Novembre	40,6	39,9	39,7	40,1	1,3 %
Décembre	71,7	71,6	71,3	71,5	0,3 %
Janvier	51,5	51,8	45,6	49,6	8 %
Février	11,2	13,4	12,4	12,3	9 %
Mars	92,7	96,1	91,1	93,3	3 %
Avril	102,5	101,2	100,0	101,2	1,3 %
Mai	63,2	63,8	56,9	61,3	7,2 %
Juin	36,6	34,9	34,6	35,4	3,7 %
Juillet	13,6	12,1	11,9	12,5	9 %
Août	6,8	6,6	6,6	6,7	1,5 %
Septembre 1958 à Août 1959	536	537	509	527	3,4 %

TABLEAU IX

Activité superficielle β en millicuries par kilomètre carré
Moyenne pour la France - Septembre 1961 à Avril 1962

Mois (et nombre de stations)	Moyennes arithmétiques des "n" stations	Moyennes calculées par la méthode des secteurs pluviométriques	Moyennes calculées par pluviométrie interisoline	Moyennes des trois valeurs	Ecart maximum en %
Septembre (19)	44,0	44,0	42,6	43,5	2,1 %
Octobre (19)	93,8	92,4	94,9	93,7	1,4 %
Novembre (19)	105,5	99,7	95,1	100,1	5 %
Décembre (20)	105,9	97,0	96,9	99,9	5,7 %
Janvier (20)	94,4	93,9	92,3	93,5	1,3 %
Février (20)	54,5	53,0	50,9	52,8	3,7 %
Mars (24)	84,8	82,7	81,8	83,1	2 %
Avril (26)	72,3	72,3	73,2	72,6	0,8 %
Septembre 1961 à Avril 1962	655	635	645	645	1,5 %

IV - 2/4.3 - Méthode par planimétrage interisoline d'activité.

Dans la méthode précédente, la hauteur moyenne des précipitations servait juste à indiquer la similitude relative des conditions météorologiques dans un périmètre donné au cours du mois considéré. Toutefois, d'autres facteurs que la pluviométrie intervenant dans les apports au sol des retombées radioactives, B. Guilmet a cherché à utiliser une méthode de calcul qui ne fasse intervenir aucun facteur météorologique à aucun titre, sans présumer pour autant la totale représentativité du réseau de collecteur existant /G8/.

Cette méthode consiste à tracer des courbes d'égale radioactivité sur la France, en calculant par planimétrage les surfaces ainsi délimitées. Par sommation des activités partielles, il obtient l'activité totale sur l'ensemble de la France et en déduit l'activité moyenne en millicuries par kilomètre carré.

Les résultats obtenus par cette méthode figurent également dans les tableaux VIII et IX.

IV - 2/4.4 - Conclusion.

La plupart des résultats concordent remarquablement et diffèrent le moins de 10 % de la moyenne des trois valeurs calculées de trois manières différentes. Ces écarts correspondent aux différences que l'on peut s'attendre à trouver entre les résultats relatifs à deux collecteurs placés côte à côte. On est donc amené à conclure que, malgré sa faible densité, le réseau français de collection des retombées radioactives est représentatif et que sa valeur statistique est satisfaisante.

Il était tentant d'examiner ce qu'auraient donné des réseaux encore plus réduits. Dans ce but, on a comparé les moyennes arithmétiques mensuelles de la période Septembre 1958 - Août 1959 pour le réseau de 18 stations, avec celles déduites de celui-ci mais ne comportant respectivement que 12 - 9 et 6 stations. Les résultats qui figurent au tableau X ci-après montrent que si les moyennes annuelles restent très voisines, des écarts mensuels sont souvent importants et peuvent atteindre 20 à 30 %. On peut déduire que cette comparaison que, pour un pays de superficie moyenne et de climats aussi diversifiés que la France, un réseau d'une dizaine de collecteurs judicieusement répartis donne déjà une assez bonne approximation du niveau des retombées radioactives dans cette zone.

TABLEAU X

Activité superficielle β en millicuries par km²
Moyenne pour la France de Septembre 1958 à Août 1959

	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.	Janv.	Févr.	Mars	Avril	Mai	Juin	Juil.	Août	Sept. à Août
Moyennes													
18 stations	21,0	24,6	40,6	71,7	51,5	11,2	92,7	102,5	63,2	36,6	13,6	6,8	536
Moyennes													
12 stations	20,3	24,0	41,9	69,3	54,7	13,0	93,6	106,6	67,4	37,4	14,4	7,2	550
Ecarts	-0,7	-0,6	+1,3	-2,4	+3,2	+1,8	+0,9	+4,1	+4,2	+0,8	+0,8	+0,4	+14
Moyennes													
9 stations	26,5	22,2	36,0	73,9	46,1	10,9	99,9	97,0	48,4	33,0	12,5	6,2	512
Ecarts	+5,5	-2,4	-4,6	+2,2	-5,4	-0,3	+7,2	-5,5	-14,8	-3,6	-1,1	-0,6	-24
Moyennes													
6 stations	19,6	26,6	41,1	79,4	55,3	8,1	88,8	116,7	66,5	42,8	10,4	7,4	557
Ecarts	-1,4	+2,0	+0,5	+7,7	+3,8	-3,1	-3,9	+14,2	+3,3	+6,2	-3,2	+0,6	+21

12 stations : Lille - Saclay - Strasbourg - Le Mans - Luxeuil - Ambérieu - Bourges - Nantes - Bordeaux - Biarritz - Toulouse - Ajaccio.

9 stations : Lille - Strasbourg - Dijon - Le Mans - Rostrenen - Cognac - Toulouse - Marignane - Ambérieu.

6 stations : Bourges - Reims - Nantes - Bordeaux - Ambérieu - Ajaccio.

CHAPITRE IV. 3

EVALUATION DES DEBRIS RADIOACTIFS ARTIFICIELS DEPOSES A LA SURFACE DU GLOBE

IV - 3/1 - EVALUATION DE LA RADIOACTIVITE β GLOBALE DEPOSEE SUR LA FRANCE

Comme nous venons de le voir au chapitre IV - 2, la valeur moyenne mensuelle des retombées radioactives sur la France est relativement exempte de fluctuations aléatoires et climatiques. La figure 1 montre l'évolution mois par mois de cette grandeur, de Septembre 1958 à Décembre 1962.

Puisqu'il s'agit de mesures β globales, les remarques que nous avons faites dans le cas des aérosols s'appliquent encore ici : à savoir que l'âge des nuclides mesurée est la principale cause de variation du niveau de la radioactivité β globale. On constate donc, figure 1, une décroissance générale de la radioactivité des retombées de la fin 1958 au milieu 1961, suivie d'une très brusque augmentation en Septembre 1961, au moment de la reprise des essais nucléaires (voir tableau I du chapitre II - 4).

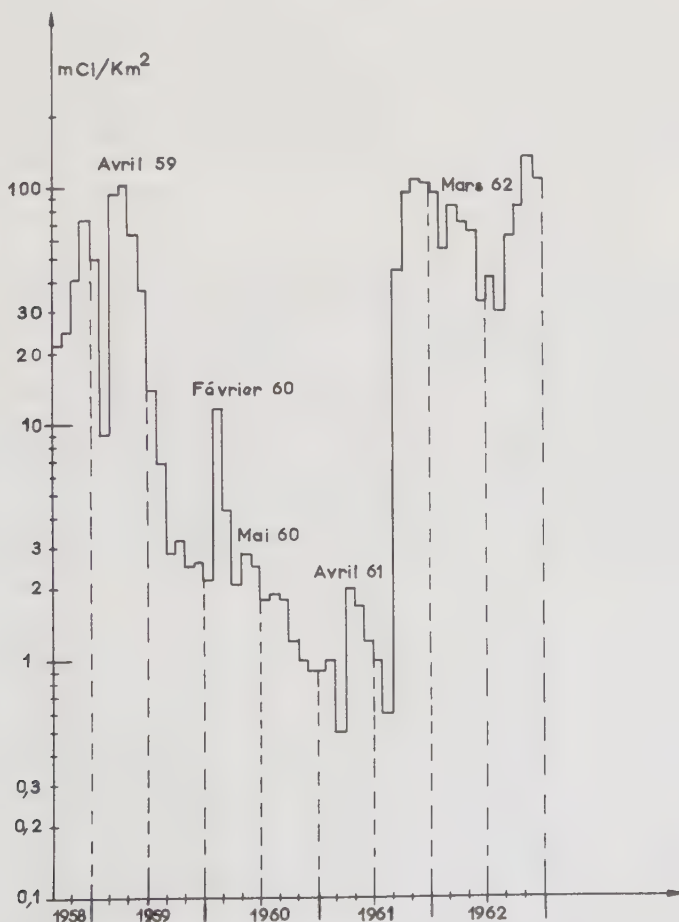


Fig. 1/IV.3 - Radioactivité β globale des retombées : valeur mensuelle moyenne sur la France.

A côté de cette évolution générale nous constatons diverses variations à caractère accidentel ou saisonnier :

1/ Certains mois particulièrement secs sont caractérisés par des retombées radioactives très faibles. L'exemple le plus net est celui du mois de Février 1959, où l'activité déposée semble être le cinquième de ce qui aurait été déposé un mois normal. Ceci confirme bien que la proportion des retombées sèches peut atteindre 20 %, mais faute de connaître exactement le niveau qui aurait dû être atteint ce mois-là, on ne peut préciser davantage cette valeur.

2/ Le dépôt de produits de fission jeunes, à la suite de l'explosion de Reggane, en Février 1960, se traduit le même mois en un pic très net de radioactivité, presque disparu dès le mois suivant.

3/ Certaines augmentations paraissent périodiques et doivent être interprétées comme des effets saisonniers. Il s'agit des pics de Avril 1959, Mai 1960, Avril 1961, Mars 1962. On doit remarquer à ce propos que l'augmentation saisonnière des retombées radioactives se produit un mois plus tôt environ, que l'augmentation de la radioactivité artificielle des aérosols au niveau du sol. On pourrait attribuer ce décalage au fait qu'au mois d'Avril la pluviométrie est souvent plus importante qu'au mois de Mai. Toutefois les différences de pluviométrie ne devraient pas compenser l'importante augmentation d'activité constatée entre Avril et Mai, dans le cas des aérosols (cf. figure 32 - chapitre II - 4). Il est alors tentant de rapprocher ce décalage de un mois du délai de deux mois environ qui semble s'écouler entre les variations de radioactivité dans la haute troposphère et les variations analogues enregistrées au niveau du sol : la valeur intermédiaire de ce décalage provient du fait que les précipitations se contaminent à une altitude intermédiaire entre le sol et la tropopause.

IV - 3/2 - ACCUMULATION DE RADIONUCLIDES A LONGUES PERIODES

Nous avons vu que la plus grande partie des radionuclides déposés sur le sol est constituée de substances jeunes, où prédominent les produits de fission à courtes périodes. Ces produits se désintègrent rapidement et ne peuvent donc pas donner lieu à une accumulation. Au contraire, les produits de fission à longues périodes tels que le strontium 90 et le césium 137, peuvent s'accumuler dans le sol d'année en année. La mesure de la décroissance des retombées collectées par le réseau Crapal nous a donné les résultats indiqués dans le tableau I ci-dessous :

TABLEAU I

Radioactivité β globale accumulée sur la France de Septembre 1958 à Août 1961

Période de collection	Mesure instantanée (mCi/km ²)	Coefficient moyen de décroissance <i>mesuré</i> au 1er Janvier 1963	Radioactivité β globale accumulée au 1er Janvier 1963 (mCi/km ²)
Sept. - Déc. 1958	160	1/100	1,6
1er semestre 1959	353	1/30	11,8
2ème semestre 1959	31,5	1/10	3,1
1er semestre 1960 (sauf Février)	13,9	1/4	3,5
Février 1960	11,6	1/10	1,2
2ème semestre 1960	8,6	1/3	2,8
Janvier Août 1961	8,9	1/3	3
Total	587,5		27,0

Des mesures effectuées par spectrométrie γ montrent que la contribution du césium 137 est un peu supérieure à la moitié de ce chiffre.

Il convient de noter que ces estimations sont très grossières et que seul leur contrôle, par séparation radiochimique et par l'examen de la radioactivité stockée dans le sol, permettrait une évaluation sérieuse. Nos résultats confirment toutefois de façon satisfaisante les valeurs numériques adoptées par le Comité Scientifique des Nations Unies sur l'effet des radiations ionisantes, dans son rapport de 1962 /A2/.

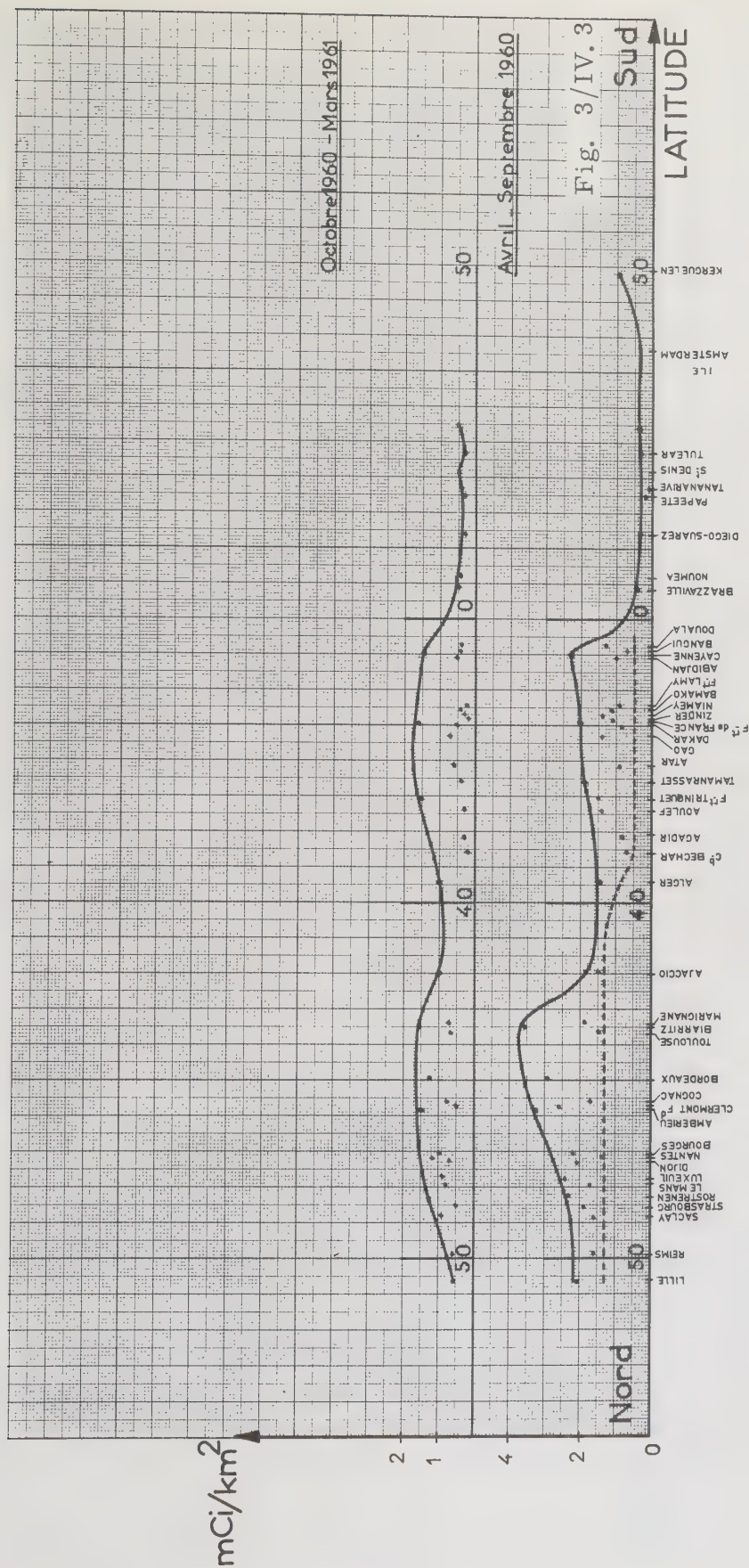
IV - 3/3 - REPARTITION GEOGRAPHIQUE DES RETOMBÉES RADIOACTIVES EN FRANCE ET DANS LE MONDE

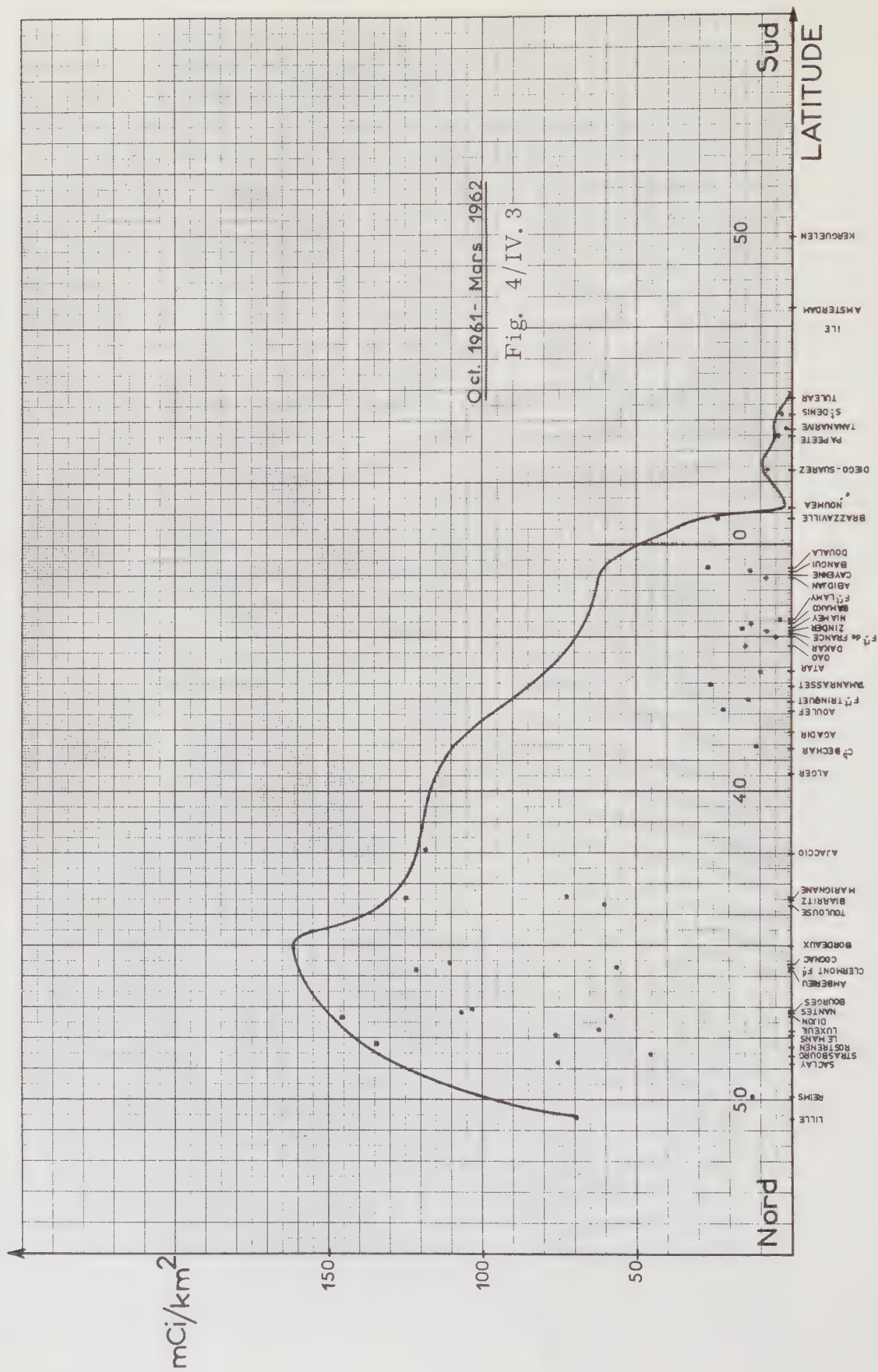
Les chiffres que nous avons adoptés pour l'ensemble de la France dissimulent le fait que les diverses régions de France sont contaminées de façon sensiblement différentes. En particulier certaines stations se signalent par des retombées sensiblement plus abondantes. Si l'on considère les résultats relatifs à des périodes de 6 mois, afin d'éliminer la plus grande partie des fluctuations aléatoires, on constate, sur les figures 2 et 3, que de Octobre 1958 à Août 1961, l'écart entre les valeurs extrêmes est, pour la France, d'un facteur 3.

Si l'on reporte les différents résultats en fonction de la latitude de la station de prélèvements, on constate en 1958 et 1959 (figure 2) que la radioactivité va croissant du Nord au Sud de la France. Si l'on examine les résultats plus au Sud, on constate qu'à partir de 40° de latitude Nord, environ, la radioactivité déposée à la surface du globe décroît sensiblement. La variation de la pluviométrie semble affecter les résultats, Fort de France et Cayenne par exemple étant plus radioactifs que les stations africaines de même latitude. Toutefois, il apparaît que la pluviométrie considérablement plus importante dans les régions équatoriales que dans le Sahara, ne compense pas, et de loin, l'effet de latitude. Ainsi que nous l'indiquons, au chapitre II - 4, cette répartition comparée à celle des aérosols radioactifs artificiels exclut la possibilité de transferts importants entre les basses atmosphères des hémisphères Nord et Sud.

En 1960-1961 (figure 3), les effets de latitude paraissent sensiblement amoindris, bien que la dispersion des valeurs soit à peu près la même qu'au cours de la période précédente. La radioactivité β globale déposée dans l'hémisphère Sud a beaucoup moins décliné que dans l'hémisphère Nord. Ce qui nous conduit, entre Octobre 1960 et Mars 1961 à une répartition en latitude presque homogène dans les deux hémisphères. Ces résultats confirment pleinement ceux que nous avons déjà indiqués à propos des aérosols.

Les valeurs moyennes semestrielles atteintes dans l'hémisphère Nord, après la reprise des essais nucléaires de 1961, indiquées figure 4, dépassent très largement celles que nous avons enregistrées en 1958-1959. De plus, le maximum de latitude s'est sensiblement déplacé vers le Nord et, bien que l'écart entre les valeurs extrêmes reste voisin d'un facteur 3, les points figuratifs des stations paraissent bien plus désordonnés. L'hémisphère Sud paraît fort peu affecté par cette nouvelle contamination, bien que l'augmentation par rapport aux semestres précédents y soit sensible, même avant la série d'explosions de Avril 1962. On peut donc dire que si, dans l'ensemble, les transferts entre hémisphères ont été extrêmement faibles, comme le laissait prévoir l'étude de la concentration des aérosols radioactifs artificiels, une certaine quantité de débris radioactifs a pénétré dans la troposphère de l'hémisphère Sud. La répartition des retombées en fonction de la latitude, dans cet hémisphère, semble toutefois confirmer qu'à l'exception des zones très voisines de l'équateur, il ne s'agit pas de transferts à basse altitude, mais d'une contamination d'origine stratosphérique.





IV - 3/4 - CONCLUSION

Outre les données numériques relatives au dépôt de débris radioactifs à la surface du globe, les études effectuées dans cette quatrième Partie ont confirmé l'ensemble des conclusions que nous avons formulées à propos des aérosols radioactifs artificiels.

La contamination des précipitations semble s'effectuer à une altitude de plusieurs kilomètres, ce qui a pour effet de renforcer sensiblement, dans le cas des retombées radioactives, les effets dus aux transferts de la stratosphère à la troposphère. La granulométrie des gouttes d'eau, plus élevée que celle des aérosols, a pour effet d'accélérer leur chute, ce qui fait d'une part que les variations de la radioactivité des précipitations paraissent en avance sur celles de la concentration des aérosols, et d'autre part que les débris radioactifs que l'on y rencontre peuvent être sensiblement plus jeunes que ceux qui constituent les aérosols. Ce dernier fait explique notamment que la contamination de l'hémisphère Sud en débris radioactifs avant Avril 1962 apparaisse plus nettement, par l'intermédiaire des précipitations que par l'étude des aérosols, et également que les retombées radioactives recueillies dans l'hémisphère Nord en Mai 1962 aient pu contenir des débris des explosions américaines de Avril 1962, alors que les mesures effectuées sur les aérosols radioactifs, au niveau du sol, ne permettaient pas de les déceler. Ces dernières constatations soulignent encore, s'il en était besoin, le rôle considérable joué par les précipitations dans le nettoyage rapide de la troposphère.

CINQUIÈME PARTIE

CONCLUSIONS

V - 1 - GENERALITES SUR LES MESURES DE RADIOACTIVITE

Nous avons vu que les explosions nucléaires avaient introduit dans l'atmosphère, sous forme d'aérosols, une importante quantité de produits de fission. Ces aérosols se retrouvent dans les diverses couches de l'atmosphère et finissent par se déposer à la surface du globe, après un temps très variable.

La description des méthodes de mesure de la concentration atmosphérique de ces aérosols, ou de l'intensité de leur dépôt à la surface du globe, et l'étude de la validité et de la précision de ces mesures sont largement développées dans les chapitres qui précèdent. Faute de procéder à des séparations chimiques qui permettraient le dosage de chaque radionuclide isolément, nous avons vu que ces mesures sont précises à seulement un facteur 2 près, et leur reproductibilité varie de 5 à 40 %, suivant les cas. D'autre part, la présence dans l'atmosphère des aérosols radioactifs naturels à courte période nous oblige à n'effectuer les mesures de radioactivité artificielle qu'après un délai de plusieurs jours, ce qui limite les possibilités d'étude des variations rapides de cette activité. Enfin, les aérosols radioactifs naturels à longue période, issus du radium D (Pb 210) toujours présents dans l'atmosphère nous interdisent de mesurer directement des concentrations de produits de fissions inférieures à 10^{-14} ou 10^{-15} Ci/m³, au niveau du sol.

En fait, comme le montre la figure 1, les concentrations observées pour les produits de fission ont presque toujours été intermédiaires entre celles des aérosols radioactifs naturels à courte période et celles des aérosols à longue période, si bien que les mesures ont toujours été possibles (d'autant plus que les régions du globe les moins contaminées par les produits de fission présentent les plus faibles radioactivités naturelles). De nombreuses variations de radioactivité observées dépassaient un facteur 3 à 10 et atteignaient parfois un facteur 100 (par exemple entre Août et Septembre 1961, après la reprise des explosions nucléaires). Ainsi, malgré la faible précision des mesures, et leur sensibilité limitée, de nombreuses variations de concentrations ont pu être mises en évidence, en fonction du temps, de l'altitude ou des coordonnées géographiques du lieu de prélèvement. De même, nous avons enregistré des fluctuations saisonnières et quotidiennes qui venaient se superposer à l'évolution à long terme liée au calendrier des explosions, évolution caractérisée par des radioactivités très faibles pendant la durée du moratoire (1959-1961).

Nous avons donc pu énoncer plusieurs lois empiriques sur la répartition des aérosols radioactifs artificiels et sur leur mode de dépôt au sol, qui nous ont amenés à formuler certaines hypothèses relatives à la circulation générale de l'atmosphère et aux modes de transfert d'une zone à une autre. L'ensemble de ces observations et de ces hypothèses forme un tout suffisamment cohérent pour que nous puissions présenter un tableau du comportement des aérosols radioactifs artificiels introduits dans l'atmosphère par les explosions nucléaires, et de quelques lois plus générales qu'implique ce comportement.

Dans tous ces processus, la circulation des aérosols peut être assimilée à celle des masses d'air qui les contiennent, puisqu'à aucun moment, exception faite du nettoyage de la basse atmosphère, les aérosols de granulométrie micronique ou submicronique n'ont pu être différenciés sensiblement de leur support gazeux. Même en haute atmosphère, nous avons vu que la pesanteur ne pouvait rendre compte à elle seule des répartitions observées.

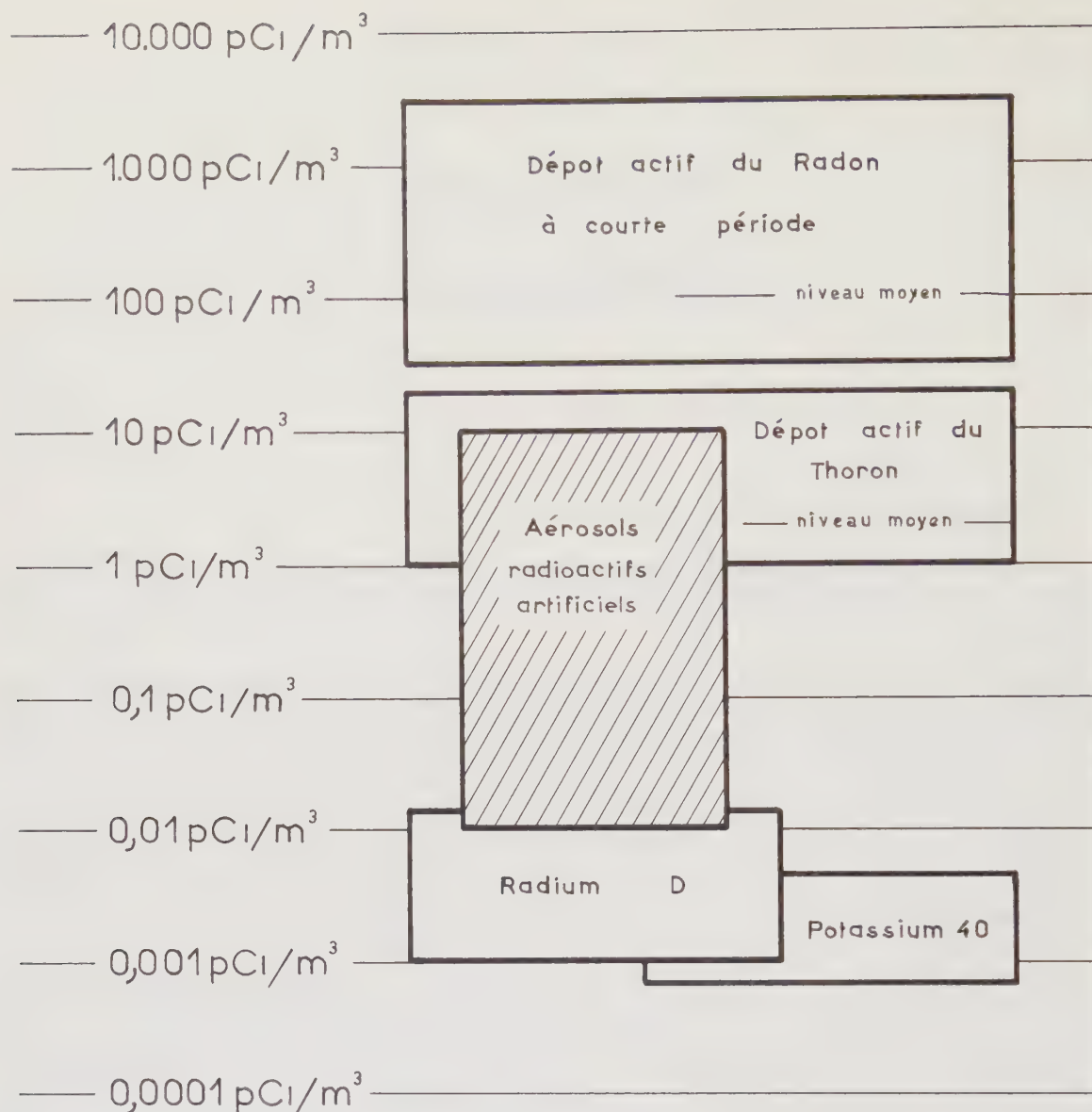


Fig. 1/V - Domaines de concentration des aérosols radioactifs β à Saclay (pCi/m^3).

V - 2 - COMPORTEMENT DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS DANS LA STRATOSPHERE

Nous avons rappelé que, lors d'une explosion nucléaire, une fraction importante des produits de fission créés était injectée dans la stratosphère (cf. tableau VI - chapitre II - 1). Ce fait est tout à fait capital, car la lenteur des processus de nettoyage de la stratosphère explique la présence de radionuclides artificiels dans l'atmosphère, plusieurs années après leur formation. L'altitude moyenne atteinte initialement par ces produits dépend de l'altitude de l'explosion, mais aussi de sa puissance. Ainsi, fin 1961, nous avons constaté que la plus grande partie des produits de fission semble avoir dépassé 25 km d'altitude, alors que, lors des explosions de 1958, les basses couches de la stratosphère avaient été les plus contaminées.

Les produits de fission ainsi injectés à haute altitude sont entraînés par la circulation générale stratosphérique, essentiellement zonale, dont l'étude directe, au moyen de ballons-sondes,

est très avancée ainsi que le montrent les exposés de Barbé /B1/ et Tasson /T2/. Par contre l'étude des composantes méridienne et verticale de cette circulation pose encore de nombreux problèmes.

L'étude de la diffusion du tungstène 185 introduit dans la stratosphère équatoriale a montré que la circulation méridienne était extrêmement réduite, et devait plutôt être considérée comme une diffusion lente /F6/. Toutefois, nous avons montré, au Chapitre III - 2, que quelques jours après les explosions réalisées en 1962 au voisinage de l'équateur, leurs débris apparaissaient entre 20 et 30 km d'altitude aux latitudes moyennes, ce qui montre l'existence au moins occasionnelle de courants méridiens dans la stratosphère. D'autre part, il est indéniable que malgré le faible nombre d'explosions survenues dans l'hémisphère Sud, et en dépit de la barrière équatoriale qui interdit pratiquement les transferts à basse altitude entre les deux hémisphères, l'ensemble de l'hémisphère Sud a été contaminé par les aérosols radioactifs artificiels (cf. Chapitre II - 4). Pendant la durée du moratoire, les différences entre les deux hémisphères ont été en s'atténuant ce qui nous permet d'évaluer à 3 ans, environ, le temps nécessaire à l'homogénéisation de l'ensemble de la stratosphère par diffusion méridienne.

La répartition verticale des aérosols est sans doute partiellement affectée par leur pesanteur, mais nous avons vu que celle-ci ne saurait en aucun cas expliquer les temps de résidence constatés, compris entre 6 mois et 2 ans, donc sensiblement plus courts que ceux que l'on prévoyait initialement (il est d'ailleurs remarquable que ce temps de séjour apparaît plus court que le temps d'homogénéisation dont nous parlions ci-dessus). De plus, si l'on doit admettre qu'à la suite des explosions de 1958 la stratosphère présentait un maximum de radioactivité entre 5 et 10 km au dessus de la tropopause, nos propres expériences de coupes verticales de l'atmosphère, effectuées systématiquement par faible turbulence, montrent que l'altitude de ce maximum est assez variable d'un jour à l'autre et son intensité parfois peu prononcée. Nous avons interprété cela en supposant que ce maximum est un effet statistique, résultant des brassages verticaux à l'intérieur d'une masse d'air stratosphérique et non le résultat d'actions physiques permanentes s'exerçant sur les aérosols, tels que la pesanteur ou le rayonnement solaire (voir Chapitre III - 2).

V - 3 - TRANSFERT DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS DE LA STRATOSPHERE A LA TROPOSPHERE

La présence d'aérosols radioactifs artificiels dans la troposphère, plusieurs années après une série d'explosions nucléaires, en dépit du nettoyage intense auquel elle est soumise, nous oblige à admettre que ce dernier est compensé par un apport continu des produits stratosphériques, à travers la couche extrêmement stable que constitue la tropopause.

Le modèle de circulation initialement proposé par Dobson et Brewer, et repris avec diverses modifications par Machta et coll. /M1/ expliquait ces transferts par l'existence dans la tropopause de brèches, associées à des courants jets, au voisinage des latitudes moyennes. Spar et Feely /S6/, puis Friend et coll. /F6/ ont été amenés à supposer que le mouvement de diffusion méridienne mis en évidence dans le cas du tungstène 185 pouvait s'appliquer au franchissement horizontal, par les aérosols, des brèches de la tropopause schématisées sur la figure 3/I. Ces deux types de raisonnement expliquent l'apparition d'un maximum de concentration des aérosols radioactifs artificiels au voisinage des latitudes moyennes. Les augmentations printanières de concentration, que nous avons constatées en France, mais qui ne sont pas confirmées par tous les observateurs, seraient expliquées dans les deux cas par une injection assez brutale dans la troposphère, consécutive à l'élévation de l'altitude de la tropopause au début du printemps.

La difficulté d'expliquer les différences très prononcées de contamination de deux masses d'air voisines nous a conduit (cf. Chapitre II - 4) à supposer que les transferts à travers la tropopause étaient des phénomènes locaux et discontinus se produisant avec une probabilité variable en fonction de la saison et de la latitude. La latitude où ces échanges sont les plus probables varie, parallèlement au déplacement saisonnier apparent du soleil, entre 20 et 50 degrés, dans l'hémisphère Nord. Elle est voisine de 40° au printemps, à l'époque où les échanges sont les plus efficaces. Une partie des aérosols ainsi injectés dans la stratosphère parvient très rapidement au niveau du sol, et provoque l'apparition d'un certain nombre de pics de radioactivité artificielle, mais l'augmentation moyenne ne se produit qu'après un délai de près de deux mois, nécessaire à la plus grande partie des aérosols injectés pour atteindre le niveau du sol. On explique ainsi le délai qui s'écoule entre le passage à une latitude donnée d'un nombre maximum de pics, et l'apparition d'un maximum géographique de concentration.

Outre les fluctuations rapides de concentration des aérosols, ce schéma a donc le mérite d'expliquer également le déplacement saisonnier du maximum géographique de concentration, et l'import-

tance particulière du maximum de printemps aux latitudes moyennes, ce dernier résultant de deux effets combinés (passage du maximum géographique et intensification des échanges stratosphère - troposphère). La plus grande partie des variations de concentration observées au niveau du sol reflèteraient ainsi les échanges entre la basse stratosphère et la troposphère. Ceci est bien confirmé par le fait que en 1961-1962, la faible contamination de la basse stratosphère (comparée à la contamination directe de la troposphère) a eu pour effet de modifier considérablement les lois empiriques précédemment établies : en particulier faiblesse du maximum de printemps en 1962, et absence de maximum géographique net.

Les mécanismes responsables de ces transferts par bouffées ne sont pas encore éclaircis, bien que Libby /L16/ ait prévu leur possibilité, dès 1959. Staley a indiqué en 1960 la possibilité de transferts isentropiques /S7/. D'autre part d'après Barbé /B2/ certains courants jets possèderaient une composante verticale descendante qui pourrait expliquer ces échanges discontinus. Seul un travail systématique et prolongé utilisant de nombreux prélèvements simultanés des aérosols à différentes altitudes permettrait la mise en évidence directe de ces processus dont nous avons seulement établi indirectement la présomption. Peut-être faut-il toutefois attribuer à un tel processus les concentrations que nous avons observées le 17 Juin 1959, et que nous indiquons figure 3/III - 2.

V - 4 - CIRCULATION DES AEROSOLS DANS LA TROPOSPHERE

V - 4/1 - La circulation atmosphérique dans la troposphère a fait l'objet d'un nombre considérable d'études théoriques et d'observations qui sont à la base des connaissances météorologiques. Malgré son caractère zonal prédominant, elle apparaît évidemment beaucoup plus complexe que la circulation à haute altitude. Si l'étude des courants atmosphériques permanents ou aléatoires, du cycle de la vapeur d'eau, et des problèmes de diffusion et de turbulence à petite échelle, a pu être poussée extrêmement loin, par contre, faute de moyens expérimentaux adaptés, les problèmes de diffusion à grande échelle commencent seulement à être résolus, en partie grâce aux traceurs radioactifs. Le nettoyage relativement rapide de la basse atmosphère, qui interdit l'accumulation des aérosols, assure le contraste entre masses d'air différemment marquées, ainsi que nous l'avons souligné dans la Première Partie.

Les aérosols radioactifs présents dans la troposphère ont trois origines différentes :

1/ Le dépôt actif du radon et du thoron, introduit dans l'atmosphère de façon permanente, à partir du sol des continents, c'est-à-dire sur une superficie considérable, et qui reste essentiellement confiné dans les premières centaines de mètres d'épaisseur de l'atmosphère. Une faible partie du radon parvient néanmoins dans la stratosphère où peuvent ainsi s'accumuler le radium D et ses descendants.

2/ Les produits de fission résultant des explosions nucléaires (et accessoirement des installations industrielles) qui n'ont pas été entraînés dans la stratosphère et qui sont caractérisés par des concentrations initialement très disparates, en particulier par une répartition verticale irrégulière, et que nous avons appelés "retombée troposphérique".

3/ Les produits de fission, et le Radium D et ses descendants, d'origine stratosphérique, transférés dans la troposphère de la manière que nous avons décrite, donc répartis dans le temps et dans l'espace de façon bien déterminée.

Le comportement de ces traceurs très différents nous a permis d'étudier divers aspects de la circulation troposphérique, et de la diffusion à grande échelle dans la troposphère.

V - 4/2 - En premier lieu, la notion de "masse d'air", paraît bien précisée, tant par les mesures de radioactivité naturelle, loin des continents, que nous avons exposées au chapitre II - 3, que par l'ensemble des mesures de radioactivité artificielle examinées au chapitre II - 4. En particulier les mesures de radioactivité artificielle effectuées toutes les 3 heures à Saclay, durant plusieurs mois nous montrent que l'on a une véritable circulation de cellules homogènes, nettement distinctes les unes des autres, et dont les dimensions horizontales, déduites de la vitesse de circulation et de la durée du passage d'une cellule, peuvent être fixées à quelques centaines de kilomètres. D'autre part, les mesures effectuées par nous le long du pylône météorologique de Saclay, ainsi qu'au sommet et à la base de la tour Eiffel par Tanaevsky et Vassy fixent l'épaisseur de ces cellules aux alentours de quelques centaines de mètres.

V - 4/3 - En second lieu, les études de concentration moyenne du radon loin des continents nous ont permis de retrouver les chiffres habituellement avancés pour la vitesse de circulation zonale. Nous avons ainsi trouvé qu'une durée moyenne approximative de 5 jours s'écoulait entre le

passage d'une masse d'air au dessus des continents et des océans, ce qui souligne le fait que la circulation zonale est dans l'ensemble plus rapide dans l'hémisphère Sud.

V - 4/4 - Comparé à cette vitesse, le mouvement méridien de dérive des masses d'air, qui ressort de l'étude des retombées troposphériques de Février 1960 et Septembre-Novembre 1961, paraît sensiblement plus lent. Au voisinage de l'équateur, cette dérive cesse complètement et les troposphères Nord et Sud nous paraissent séparées par une véritable barrière que seules des masses d'air limitées peuvent franchir, probablement à la suite de la formation locale d'une dépression ou d'un anticyclone capable de dévier la circulation atmosphérique, mais certainement pas par diffusion permanente. La latitude de cette barrière varie probablement avec la saison, et son existence pourrait résulter de celle de courants ascendants marqués, au voisinage de l'équateur.

Assez curieusement, dans tous les cas où nous avons étudié ce mouvement méridien, à la suite des explosions de Février 1960 à Reggane, de Septembre à Novembre 1961 en Europe septentrionale, de Juin 1962 aux îles Christmas, la dérive se produisait en direction du Sud, résultat que nous ne pouvons évidemment pas généraliser.

V - 5 - NETTOYAGE DE LA TROPOSPHERE

Nous avons vu que c'est l'existence de processus intenses de nettoyage qui distinguait la troposphère de la stratosphère, et le comportement des aérosols de celui des gaz.

Le rôle fondamental dans ces processus de nettoyage de la troposphère paraît assuré par les précipitations. Toutefois, la pluie (ou la neige) semblent sans effet sur les aérosols submicroniques responsables de la radioactivité naturelle et artificielle, dont la concentration au voisinage du sol n'est pas affectée directement par les précipitations (cf. Chapitre II - 4). La collection de ces poussières fines se produit donc essentiellement au niveau des formations nuageuses, probablement conformément aux mécanismes indiqués par Facy /F1/F2/F3/. C'est ce qui explique que, en régime stratosphérique, où la descente des aérosols depuis la stratosphère s'effectue à un rythme moyen déterminé, on puisse trouver une radioactivité spécifique de l'eau des précipitations indépendante de la hauteur d'eau tombée en un lieu donné, à partir d'un niveau minimum (cf. Chapitre IV - 2).

Une conséquence de l'intervention des précipitations est d'accélérer la chute des aérosols, à la fin de leur trajectoire, ce qui peut expliquer un petit décalage entre l'âge des aérosols présents à basse altitude, et l'âge des débris collectés par la pluie.

Un deuxième processus de nettoyage, que nous avons mis en évidence (voir Chapitre IV - 2) consiste dans la filtration qui résulte de l'action des obstacles constitués principalement par la végétation, sur les masses d'air animées de mouvements de convection et de turbulence naturelles. Dans leur mouvement, les filets d'air lèchent les obstacles, et par diffusion moléculaire, les aérosols qu'ils contiennent viennent en contact avec une surface solide à laquelle ils restent fixés. L'efficacité de ce phénomène dépend évidemment de la circulation et de la turbulence atmosphériques, de la surface équivalente des obstacles, et de leur pouvoir de rétention, ainsi que de la nature et de la granulométrie des aérosols, en particulier de leur charge électrique éventuelle.

L'efficacité relative des deux processus de nettoyage dépend essentiellement des conditions de contamination de l'atmosphère : le processus sec peut être prépondérant lorsqu'on a affaire à une contamination troposphérique, et représenter jusqu'à 80 % du dépôt au sol ; lorsque la contamination est d'origine stratosphérique, les concentrations plus élevées que l'on rencontre à l'altitude où se forment les nuages expliquent le renversement de la tendance, et le dépôt sec représente alors environ 20 % du dépôt total. L'importance relative variable du dépôt sec explique que la constance de la radioactivité spécifique des précipitations puisse être masquée, et donner naissance au régime hyperbolique et au régime irrégulier que nous avons décrits au chapitre IV - 2.

Il convient de noter que la turbulence atmosphérique agit également dans le cas des précipitations : nous avons ainsi trouvé à Saclay, que la pluie tombait en moyenne en faisant avec l'horizontale un angle un peu inférieur à 45°. La turbulence verticale de l'air peut alors intervenir et suffit à provoquer une remontée d'une partie des gouttes de pluie, dans la proportion de 30 % environ, ce qui modifie sensiblement les conditions du dépôt au sol. Ainsi nous voyons que par l'intermédiaire de la pluviosité et de la turbulence de l'atmosphère, les conditions météorologiques interviennent considérablement, ce qui donne aux mesures de dépôt au sol ce caractère aléatoire que nous avons signalé au chapitre IV - 2.

V - 6 - BILAN DE LA RADIOACTIVITE

Nous voyons, d'après ce qui précède, qu'une évaluation sérieuse de la radioactivité artificielle déposée à la surface du globe par extrapolation à partir des stations est extrêmement difficile. En particulier les processus de dépôt que nous avons décrits sont nettement différents au dessus des continents et des océans si bien qu'il est très difficile d'apprécier ce qui est retombé en dehors des terres. Les mesures effectuées dans les régions méditerranéennes laissent toutefois prévoir que les différences ne seront pas très élevées, les embruns marins jouant alors le même rôle que la végétation. Le chiffre de 27 mCi/km² de radioactivité β accumulée sur la France au 1er Janvier 1963 compte tenu de la décroissance, en 3 ans (Septembre 1958 à Août 1961), est purement indicatif, mais correspond à peu près à ce qui a été trouvé dans d'autres pays sous la même latitude.

Les niveaux atteints par la concentration des aérosols radioactifs artificiels au niveau du sol sont constamment restés inférieurs aux doses maximales admissibles pour les populations non exposées professionnellement, telles qu'elles figurent dans le rapport de la Commission Internationale de Protection Radiologique : les activités les plus élevées ont été obtenues pour des produits de fission jeunes, les radionuclides à longue période les plus dangereux, tels que le strontium 90, intervenant peu dans cette activité.

Toutefois, il faut noter que la description du comportement général des aérosols radioactifs artificiels que nous avons tentée laisse dans l'ombre un certain nombre de problèmes, si bien qu'un inventaire complet de la radioactivité artificielle présente dans le milieu ambiant, y compris la stratosphère, ne peut être qu'imprécis.

BIBLIOGRAPHIE

- A1 - ANONYME - Rapport du Comité Scientifique pour l'Etude des Effets des Radiations Ionisantes. 1958.
- A2 - ANONYME - Rapport du Comité Scientifique pour l'Etude des Effets des Radiations Ionisantes. 1962.
- A3 - ANONYME - Document ONU/A/AC/82/R86/Add 2. Juillet 1960.
- A4 - ANONYME - Rapport H. A. S. L. 115/U. S. A. E. C. Octobre 1961.
- A5 - ANONYME - Publié par le S. C. R. G. R. du C. E. A.
- A6 - ANONYME - Informations de Presse. 1961. 1962.
- A7 - B. ARDOUIN, C. JEHANNO, J. LABEYRIE, G. LAMBERT, B. PARLIER - B. I. S. T. 56. 1961.
- A8 - B. ARDOUIN, T. GRJEBINE, J. LABEYRIE, G. LAMBERT - Rapport DE/SEP/1576/203/C. E. A. 1962. Egalement J. de Meca et de Phys. de l'atmosphère. II, 15. 93 - 106. 1962.
- A9 - B. ARDOUIN, J. LABEYRIE, G. LAMBERT, J. LEGAY - Rapport DE/SEP/1622/225/C. E. A. Septembre 1962.
- A10 - B. ARDOUIN, C. JEHANNO, J. LABEYRIE, O. TANAEVSKY, E. VASSY - Rapport C. E. A. 2261. 1963.
- A11 - B. ARDOUIN, J. LABEYRIE, G. LAMBERT, O. TANAEVSKY, E. VASSY - Rapport C. E. A. (en préparation).
- B1 - G. D. BARBE - Notes de l'établissement d'études et de recherches météorologiques, 93. Décembre 1961.
- B2 - G. D. BARBE - Communication personnelle. 1962.
- B3 - N. BA CUONG, M. L. DRUGY, G. LAMBERT - Rapport DE/SEP/1565/196 C. E. A. 1962.
- B4 - . BENARIE - Séminaire de Physique des aérosols de la Faculté des Sciences de Paris dirigé par M. le Professeur BRICARD. 1961 - 1962.
- B5 - R. BIBRON, G. DELIBRIAS, J. LABEYRIE - B. I. S. T. 54. Septembre 1961.
- B6 - R. BIBRON - Com. Coll. Soc. Radioprotecteurs, Fontenay-aux-Roses. Décembre 1962.
- B7 - R. BJORNERSTEDT - Arkiv for Fysik, 16, 293-313. 1959.
- B8 - D. BLANC, A. BOUVILLE, J. FONTAN, G. LAMBERT - J. Phys. 24, 165-166. Fev. 1963.
- B9 - J. F. BLEICHRODT - Nature 193, 4820, 1065-1066. Mars 1962.
- B10 - I. H. BLIFFORD, L. B. LOCKHART, H. B. ROSENSTOCK - J. Geophys. Res. 57, 499 - 509. 1952.
- B11 - R. C. BOLLES, N. E. BALLOU - U. S. Nav. Rad. Def. Lab., 456. Août 1956.
- B12 - A. W. BREWER - Quart. J. Roy. Meteo. Soc. 75, 351. 1949.
- B13 - W. M. BURTON, N. G. STEWART - Nature, 186, 584 - 589. 1960.

- C1 - A. G. W. CAMERON - Can. J. Phys. 37. 1959.
- C2 - R. CHESSELET, T. GRJEBINE, G. LAMBERT, D. NORDEMANN - Com. Coll. C. N. R. S. Villefranche sur Mer, 183-208. 1961.
- C3 - R. CHESSELET, B. DAVID, G. LAMBERT, D. NORDEMANN - Rapport DE/SEP/1602/214 / C. E. A. 1962.
- C4 - R. CHESSELET, D. NORDEMANN - Com. 18° Congrès Com. Inter. Exploit. Scient. Méditerranée, Monaco. 1962.
- C5 - R. CHESSELET, D. NORDEMANN, B. DUSSARD - Com. Coll. Emploi radioisotopes, Tokyo. 1963.
- C6 - R. CHESSELET, G. LAMBERT, D. NORDEMANN - Résultats non publiés.
- C7 - R. COCHINAL - Note C. E. A. 290. 1959.
- C8 - H. CRAIG - Tellus, IX, 1-17. 1957.
- D1 - B. DAVID, G. LAMBERT - Rapport DE/SEP/1567/197/C.E.A. 1962 - Egalement Brevet Français PV 915.625. Novembre 1962.
- D2 - B. DAVID, G. LAMBERT - Rapport DE/SEP/C. E. A. (sous presse).
- D3 - G. DELIBRIAS, M. T. PERQUIS, J. LABEYRIE - B.I.S.T. 54, 16-18. Septembre 1961.
- D4 - G. M. B. DOBSON - Proc. Roy. Soc. London, A 236, 187. 1956.
- D5 - P. J. DOLAN - D. A. S. A. 525. Mai 1959.
- D6 - A. DOURY, R. MONNET - Com. Coll. Comparaison des appareils de mesure de la contamination radioactive de l'atmosphère de l'EURATOM, C. E. N. Saclay. Avril 1962.
- D7 - M. L. DRUGY, G. LAMBERT - Com. Coll. Soc. Radioprotecteurs. Avril 1962.
- E1 - K. EDVARSON - Inst. Rech. Def. Nat. Suède, Avdelning 2, Dnr 2407. 1957.
- F1 - L. FACY - C. R. Acad. Sciences, 246, 102-104. 1958.
- F2 - L. FACY - C. R. Acad. Sciences, 246, 3161-3164. 1958.
- F3 - L. FACY - Arch. Météor. Geophys. Biol., 8, 229-236. 1958.
- F4 - J. FONTAN, D. BLANC, M. BONNAFOUS, A. BOUVILLE - J. Phys. et le Radium Phys. Appli. Suppl. 11, 22, 179 A - 181 A. Novembre 1961.
- F5 - J. FONTAN, D. BLANC, A. BOUVILLE, J. LACAZE - Nature, 197, 4867, 583. Février 1963.
- F6 - J. P. FRIEND H. W. FEELY, P. W. KREY, J. SPAR, A. WALTON - Rapport H. A. S. P., DASA 1300, 1962.
- G1 - A. GHIORSO - Phys. Rev. 99, 1048. 1955.
- G2 - L. E. GLENDENIN, E. P. STEINBERG - Conf. Int. util. En. Atom. fins Pac., VII, P. 614. 1955.
- G3 - P. S. GOEL et coll. - Tellus, 11, 91-100. 1959.
- G4 - P. GOLDBERG - Conf. C. E. N. Saclay. 14 Novembre 1962.
- G5 - T. GRJEBINE, G. LAMBERT - Geofis. Pura e Appl., 50, 203-215. Mars 1961.
- G6 - B. GROSS, A. ARON, E. MEYER et coll. - 2° Conf. Inter. Genève Appl. Pacif. En. At., 18, 575-579. 1958.
- G7 - W. E. GRUMMIT, G. M. MILTON - Rapport A. E. C. L. 453. 1957.
- G8 - B. GUILMET, G. LAMBERT - non publié.
- G9 - P. F. GUSTAFSON, M. A. KERRIGAN, S. S. BRAR - Nature, 191, 454. 1961.
- G10 - P. F. GUSTAFON, S. S. BRAR, M. A. KERRIGAN - J. Geophys. Res. 67, 12, 4641-4651. Novembre 1962.
- H1 - H. A. HALLDEN, I. M. FISENNE, L. ONG et coll. - Rapport H. A. S. L. 61-20/U. S. A. E. C. 1961.
- H2 - J. H. HARLEY, N. A. HALLDEN, L. D. Y. ONG - Rapport H. A. S. L. 93, 7-8 / U. S. A. E. C. Septembre 1960.

- H3 - O. HAXEL, G. SCHUMANN - Zeitsch. für Physik, 142, 2, 127-132. 1955.
- H4 - J. Z. HOLLAND - Rapport U.S. /A. E. C. TID. 5555. 1959.
- H5 - J. HORAK - Geophys. Inst. Czech. Acad. Sci. Egalement document O.N.U. A/AC.82/G/L/505.
- H6 - H. F. HUNTER, N. E. BALLOU - Nucleonics, 9, c2-c7. 1951.
- I1 - H. ISRAEL - Compendium of meteorology, Am. Meteor. Soc. Boston. 1951.
- J1 - . JACOBS, C. WOODROW - Monthly Wea Rev., 65, 147-151 - Washington D. C. 1937 (Cité par H. U. SVERDRUP et coll. dans "The oceans, their physics, chemistry, and general biology", Prentice Hall INC, Englewood Cliffs, N.J. 1959).
- J2 - C. JEHANNO, O. TANAIEVSKY, J. LABEYRIE, E. VASSY - J. de Meca. et Phys. de l'Atm., II Série, 1^o Ann., 1-23, Janvier-Mars 1959.
- J3 - C. JEHANNO - B.I.S.T. 30. 1959.
- J4 - C. JEHANNO, C. LALLEMANT - Inter. J. Air Poll., Pergamon Press, 1, 221-230. 1959.
- J5 - C. JEHANNO et coll. 2^o Conf. Intern. Genève util. pac. ener. atom., 15, P. 329. 1958.
- J6 - C. JEHANNO, J. LABEYRIE - B.I.S.T. 30. 1959 - Egalement J. Phys. Rad. 20, 7, 702. 1959.
- J7 - C.E. JUNGE - Adv. Geophys. 4, 1-108. 1958.
- K1 - S. KATCOFF - Nucleonics, 16, 78-85. 1958.
- K2 - S. KATCOFF - Nucleonics, 18, 201-208. 1960.
- K3 - W.W. KELLOG - Rapport A. E. C. /U 3403. 1956.
- K4 - S. KOYAMA - J. Fac. Sci., Niigata Univ. Ser. 1, 2, 107-109. 1960. Egalement document O. N. U. /A/AC.82/G/L/390.
- L1 - J. LABEYRIE - Thèse, Fac. Sci. Paris. Juin 1953.
- L2 - J. LABEYRIE, M. PELLE - J. Phys. Rad. 14, 477. 1953.
- L3 - J. LABEYRIE, G. LAMBERT - C.R. Acad. Sci. 256, 2664-2667. Mars 1963.
- L4 - M. LAFFAIRE, J. M. LAVIE - B.I.S.T., 63, Juillet 1962.
- L5 - D. LAL - Indian J. Meteor. Geophys. 10, 147-154. 1959.
- L6 - G. LAMBERT - Rapport interne C.E.A. 1960.
- L7 - G. LAMBERT - Comm. Coll. Bruxelles. Août 1962.
- L8 - G. LAMBERT - Comm. Coll. Soc. Radioprotecteurs. Décembre 1962.
- L9 - G. LAMBERT, G. POLIAN - Bull. Com. Fr. Rech. Antarctiques. Sous presse. 1963.
- L10 - G. LAMBERT, G. POLIAN - C.R. Acad. Sci. 256.19.4064-4067. 1963.
- L11 - G. LAMBERT, C.R. Acad. Sci. 256.20.4265-4267. 1963.
- L12 - C. LEGER, M. T. PERQUIS, G. DELIBRIAS - B.I.S.T. 30. Juin 1959.
- L13 - C. LEGER - Comm. Coll. Soc. Radioprotecteurs, Décembre 1962.
- L14 - C. LEGER - Comm. personnelle (Thèse à paraître). 1963.
- L15 - L. LEHMANN, A. SITTKUS - Naturwiss, 1, 9. 1959.
- L16 - W.F. LIBBY - Proc. Nat. Acad. Sci. 45, 959. 1959.
- L17 - L.B. LOCKHART, R.A. BAUX, R.L. PATTERSON, I.H. BLIFFORD - Rapport U.S. Naval Res. Lab. 5208. 1958.
- L18 - L.B. LOCKHART, R.L. PATTERSON, W.L. ANDERSON - Rapport U.S. Naval Res. Lab., 5359. Septembre 1959.
- L19 - L.B. LOCKHART, R.L. PATTERSON, A.W. SAUNDERS, R.W. BLOCK - Rapport U.S. Naval Res. Lab. 5528. Août 1960.
- L20 - L.B. LOCKHART, R.L. PATTERSON - Rapport U.S. Naval Res. Lab. 5692. Octobre 1961.

- L21 - L. B. LOCKHART et coll. - Rapports H. A. S. L. / U. S. A. E. C. 1962 et 1963.
- L22 - L. B. LOCKHART - Sciences, 128, 3332, 1139. 1958.
- M1 - L. MACHTA, R. LIST - J. Geophys. Res. 64, 1267. 1959.
- M2 - L. MACHTA - Rapport H. A. S. L. / A. E. C. U. S. 105. 1961.
- M3 - L. MACHTA, H. F. LUCAS - Sciences, 135, 296-299, Janvier 1962.
- M4 - L. D. MARINELLI, R. F. BINCKERHOFF, G. J. HINE - Rev. Mod. Phys. 19, 25-28. 1947.
- M5 - R. J. MURGATROYD - Quart. J. Roy. Meteor. Soc. 83, 417-458. 1957.
- N1 - M. NICOLET - Article sur l'Aéronomie, La Terre, Gallimard. 1959.
- N2 - M. NICOLET - Article dans Physics of the upper atmosphere, J. A. Ratcliff, Academic Press. 1960.
- P1 - D. H. PEIRSON, R. N. CROOKS, E. M. R. FISHER - Nature, 186, 224-225. 1960.
- P2 - J. C. PHILIPPOT - B. I. S. T., 52, Juin 1961.
- P3 - E. PICCIOTO - Nuovo Cimento, X, 1, 190-191. 1958.
- P4 - E. PICCIOTO - Ciel et Terre 3-4, Mars-Avril 1960.
- P5 - E. PICCIOTO et coll. - Comm. Coll. A. E. E. A., Copenhague. Octobre 1960.
- P6 - A. N. PROTOPOPOV, G. N. TOLMACHEV, V. N. USHATSKII et coll. - Atomnaya Energiya, 5, 130-134. 1958.
- Q1 - P. QUENEY - Article sur les mouvements de l'atmosphère, La Terre, Gallimard. 1959.
- R1 - RAMA, M. HONDOR - J. Geophys. Res., 66, 10, 3227-3231, Octobre 1961.
- S1 - J. SERVANT - Rapport DE/SEP/1381/174/C. E. A. Novembre 1960.
- S2 - J. SERVANT, O. TANAEVSKY - Ann. Geophys. 17, 4, 405-409. 1961.
- S3 - J. SERVANT - Communication personnelle, Thèse à paraître. 1964.
- S4 - F. SHELTON - Com. Congrès Energ. Atom. U. S. Mai 1959.
- S5 - S. SKORKA - Atomkern Energie, 5, 3. 1958.
- S6 - J. SPAR, H. W. FEELY - Nature, 188, 1062. 1960.
- S7 - D. O. STALEY - J. Meteor, 17, 591. 1960.
- S8 - A. K. STEBBINS - Special Report on H. A. S. P., DASA 532 B. Juin 1960.
- S9 - A. K. STEBBINS - 2° Special Report on H. A. S. P., DASA 539 B. Août 1961.
- S10 - K. STEWART - Faraday Soc. 52, 161. 1956.
- S11 - N. G. STEWART, R. N. CROOKS, E. M. R. FISHER - A. E. R. E. HP/R 2017, Harwell. 1956. Egalement Document O. N. U. / A/AC. 82/G/R. 15.
- S12 - N. G. STEWART, R. G. OSMOND, R. N. CROOKS, E. M. R. FISHER - A. E. R. E. HP/R 2354. 1957.
- S13 - D. STROMINGER, J. M. HOLLANDER, T. SEABORG - Rev. Mod. Phys. 30, 585. 1958.
- T1 - O. TANAEVSKY, E. VASSY - Rapports internes C. E. A. 1956 à 1963.
- T2 - A. TASSON - La Météorologie, 63, 236-260. 1961.
- T3 - K. TELEGADOS - Rapport H. A. S. L. 111/U. S. A. E. C. 169-185. Avril 1961.
- T4 - K. TELEGADOS - Rapport H. A. S. L. 117/U. S. A. E. C. 1961.
- W1 - A. WAHL - J. Inorg. Nucl. Chem. 6, 263. 1958.
- W2 - K. WAY, E. P. WIGNER - Phys. Rev. 73, 1318-1330. 1948.
- W3 - L. WEICKMANN - Meteor. Publ. A. O. 1, 1-29, Meteor. Depart. Teheran. 1961.

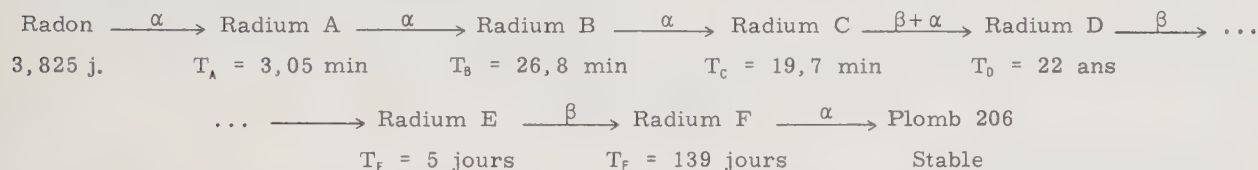
ANNEXE 1
(Ch. II-2)

CONTRIBUTION RELATIVE DES DIVERS AEROSOLS RADIOACTIFS A LA RADIOACTIVITE β GLOBALE D'UN FILTRE

A 1/1 - CONTRIBUTION DU DEPOT ACTIF DU RADON A VIE COURTE A LA RADIOACTIVITE β D'UN FILTRE

A 1/1.1 - Rappelons que le radon, qui est un gaz, a pour produits de désintégration des isotopes du polonium, du bismuth, du plomb et du thallium, tous solides à la température ordinaire, donc rapidement fixés par les aérosols présents dans l'atmosphère et les obstacles tels que les fibres cellulosiques constituant nos filtres.

Etant donné la faible probabilité de formation du radium C'' ($^{210}_{81}\text{Tl}$), qui est de $4 \cdot 10^{-4}$, et la courte période du radium C' ($^{214}_{84}\text{Po}$), qui est de $1,47 \cdot 10^{-4}$ secondes, on peut simplifier le schéma des produits de désintégration du radon tel qu'il était indiqué figure 1/II-1 de la façon suivante :



Dans l'atmosphère, le radon peut, en première approximation, être supposé en équilibre radioactif avec ses descendants, dont la période est sensiblement plus courte. Le radium D, pour sa part, a une concentration très inférieure à celle correspondant à cet équilibre, par suite de sa diffusion et de son nettoyage (cf. § II - 1/3.1).

A 1/1.2 - Si n_0 est la concentration atmosphérique du radon par unité de volume, n_A , n_B , n_C étant les concentrations en atomes de radium A, B, C et λ_0 , λ_A , λ_B , λ_C leurs constantes radioactives respectives, nous aurons à l'équilibre :

$$n_0 \lambda_0 = n_A \lambda_A = n_B \lambda_B = n_C \lambda_C = q \quad (1)$$

La constante q n'est autre que l'activité spécifique du radon, c'est-à-dire le nombre de désintégrations du radon par unité de temps et de volume, égale, à l'équilibre, au taux d'introduction des atomes de radon dans l'atmosphère.

Si Q est le débit de l'installation de pompage, et θ la durée du prélèvement, on a collecté sur le filtre

$$\begin{array}{l}
 Q \theta n_A \text{ atomes de radium A} \\
 Q \theta n_B \text{ atomes de radium B etc...}
 \end{array}$$

Chacun de ces atomes donnera naissance, au bout d'un temps limité à quelques heures, à un atome de radium D. La quantité de radium D ainsi formée sur le filtre même sera donc

$$N_D = Q \theta (n_A + n_B + n_C) \quad (2)$$

et compte tenu de l'équation (1), on a

$$N_D = Q \theta q \left(\frac{1}{\lambda_A} + \frac{1}{\lambda_B} + \frac{1}{\lambda_C} \right)$$

D'où une activité totale

$$A_0 = \lambda_0 N_0$$

et une activité apparente par unité de volume

$$a_0 = \frac{\lambda_0 N_0}{Q \theta} = q \lambda_0 \left(\frac{1}{\lambda_A} + \frac{1}{\lambda_B} + \frac{1}{\lambda_C} \right)$$

Par rapport à l'activité spécifique du radon, égale à q , on aura donc pour le radium D une activité spécifique relative "apparente" (c'est-à-dire due au radium D formé sur le filtre et non au radium D présent dans l'air) :

$$a'_0 = \frac{a_0}{q} = \lambda_0 \left(\frac{1}{\lambda_A} + \frac{1}{\lambda_B} + \frac{1}{\lambda_C} \right)$$

$$a'_0 = \frac{T_A + T_B + T_C}{T_D} = \frac{49,55}{11,55 \cdot 10^6} = 4,3 \cdot 10^{-6} \quad (4)$$

On voit donc, compte tenu des plus fortes concentrations en radon, que le radium D, formé sur le filtre même, aura une contribution négligeable à la radioactivité β du prélèvement. Seuls entreront en ligne de compte les radiums A, B et C (ce dernier étant supposé émettre successivement un rayon β puis un rayon α).

A 1/1.3 - Calcul de la croissance des activités sur le filtre.

Radium A :

Pendant l'intervalle de temps dt la variation du nombre d'atomes N_A de radium A présents sur le filtre, sera

$$dN_A = -\lambda_A N_A dt + Q n_A dt \quad (5)$$

ou compte tenu de (1) :

$$\frac{dN_A}{dt} + \lambda_A N_A = \frac{Q q}{\lambda_A} \quad (6)$$

Pour $t=0$, c'est-à-dire au début du pompage, on a bien évidemment $N_A = 0$. Cette condition initiale nous donne la solution :

$$N_A = \frac{Q q}{\lambda_A^2} (1 - e^{-\lambda_A t}) \quad (7)$$

et après un temps de pompage suffisamment long :

$$N_{A\infty} = \frac{Q q}{\lambda_A^2} \quad (8)$$

Radium B :

Le radium B présent sur le filtre provient de deux origines :

1/ du radium B atmosphérique,

2/ du radium A déjà collecté, par désintégration α de ce dernier.

d'où

$$dN_B = -\lambda_B N_B dt + Q n_B dt + \lambda_A N_A dt \quad (9)$$

d'où :

$$\frac{dN_B}{dt} + \lambda_B N_B = \frac{Q q}{\lambda_B} + \frac{Q q}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) \quad (10)$$

avec :

$$(N_B)_{t=0} = 0 \quad (11)$$

On en déduit :

$$N_B = Q q \frac{\lambda_A + \lambda_B}{\lambda_A \lambda_B^2} \left[1 - e^{-\lambda_B t} + \frac{\lambda_B^2}{\lambda_B^2 - \lambda_A^2} (e^{-\lambda_B t} - e^{-\lambda_A t}) \right] \quad (12)$$

qui peut s'écrire

$$N_B = Q q \frac{\lambda_A + \lambda_B}{\lambda_A \lambda_B^2} \left\{ 1 - e^{-\lambda_B t} \left[1 - \frac{\lambda_B^2}{\lambda_B^2 - \lambda_A^2} (1 - e^{(\lambda_B - \lambda_A)t}) \right] \right\} \quad (13)$$

compte tenu de ce que $\frac{\lambda_B^2}{\lambda_A^2} = \left(\frac{T_A}{T_B}\right)^2 \neq 1,5 \cdot 10^{-2}$ et de ce que $e^{(\lambda_B - \lambda_A)t}$ est au plus égal à 1, on peut négliger par rapport à 1, l'expression

$$\frac{\lambda_B^2}{\lambda_B^2 - \lambda_A^2} [1 - e^{(\lambda_B - \lambda_A)t}]$$

quel que soit t. D'où l'équation approchée

$$N_B = \frac{Q q}{\lambda_B} \frac{\lambda_A + \lambda_B}{\lambda_A \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) \quad (14)$$

qui conduit pour t suffisamment long à l'expression :

$$N_{B\infty} = \frac{Q q}{\lambda_B} \frac{\lambda_A + \lambda_B}{\lambda_A \lambda_B} \quad (15)$$

Radium C :

Si nous posons $l = \frac{\lambda_A + \lambda_B}{\lambda_A \lambda_B}$, on peut écrire, de façon identique à ce que nous avons fait dans le cas du radium B :

$$\frac{dN_C}{dt} + \lambda_C N_C = \frac{Q q}{\lambda_C} + Q q l [1 - e^{-\lambda_B t}] \quad (16)$$

avec

$$(N_C)_{t=0} = 0 \quad (17)$$

D'où l'on déduit

$$N_C = \frac{Q q}{\lambda_C^2} \left\{ 1 + l \lambda_C - l \lambda_C \frac{\lambda_C}{\lambda_C - \lambda_B} e^{-\lambda_B t} - \left[1 + l \lambda_C \left(1 - \frac{\lambda_C}{\lambda_C - \lambda_B} \right) \right] e^{-\lambda_C t} \right\} \quad (18)$$

$$N_{C\infty} = \frac{Q q}{\lambda_C^2} (1 + l \lambda_C) \quad (19)$$

A 1/1.4 - Radioactivité β globale du filtre due au dépôt actif du radon.

Si l'on prend la minute comme unité de temps, on a alors :

$$\lambda_A = 0,23$$

$$\lambda_B = 0,026$$

$$\lambda_C = 0,035 \quad \text{d'où } l = 42,65$$

On a alors pour le nombre d'atomes des radiums A, B et C, les expressions suivantes :

$$N_A = 19 Q q (1 - e^{-0,23t}) \quad (20)$$

$$N_B = 1640 Q q (1 - e^{-0,026t}) \quad (21)$$

$$N_C = 2035 Q q (1 + 1,33 e^{-0,035t} - 2,33 e^{-0,026t}) \quad (22)$$

Ces nombres diffèrent de leurs limites supérieures de moins de 1 %, après un temps de pompage supérieur ou égal à 210 minutes, soit 3 heures 1/2. Si l'on arrête le pompage après ce laps de temps, l'activité β du filtre décroît rapidement. L'activité β au moment de l'arrêt du pompage est sensiblement :

$$A_{\beta_0} = \lambda_B N_B + \lambda_C N_C \quad (23)$$

$$A_{\beta_0} \# 114 Q q \quad (24)$$

où, rappelons-le, A est exprimé en désintégrations par minute, et Q débit de la pompe, et q activité volumique du radon, dans des unités cohérentes (par exemple : débit en m³ par minute et activité du radon en désintégrations par minute et par m³).

L'activité α du filtre est alors

$$A_{\alpha_0} = \lambda_A N_A + \lambda_C N_C \# 76 Q q \quad (25)$$

Le rapport des activités β et α est donc, à l'équilibre, environ 1,5.

En fait, cette radioactivité ne peut être mesurée que pendant le pompage lui-même. Dès que le pompage s'arrête, la radioactivité β des trois émetteurs décroît, très rapidement. En particulier, le radium A disparaît complètement en 30 minutes (10 périodes). Si la mesure de la radioactivité β prend 20 minutes, par exemple, on devra tenir compte de cette décroissance.

Pour simplifier, on peut considérer que tous les atomes de radium A donnent, dès le début de la mesure du radium B. Le nombre d'atomes de radium B décroît alors suivant l'équation suivante :

$$N_B = b e^{-0,026 t} \quad (26)$$

avec $b = 1659 Q q$

Le nombre d'atomes de radium C sera alors donné par les équations

$$\begin{aligned} \frac{dN'_C}{dt} &= \lambda_B N_B - \lambda_C N_C \\ (N'_C)_{t=0} &= c = 2035 Q q \end{aligned} \quad (27)$$

La solution de cette équation est :

$$N'_C = b \frac{\lambda_B}{\lambda_C - \lambda_B} e^{-\lambda_B t} + \left(c - b \frac{\lambda_B}{\lambda_C - \lambda_B} \right) e^{-\lambda_C t} \quad (28)$$

c'est-à-dire

$$N'_C = 4811 Q q [e^{-0,026 t} - 0,577 e^{-0,035 t}] \quad (29)$$

On a donc finalement :

$$\begin{aligned} N'_A &= 19 Q q e^{-0,23 t} \\ N'_B &= 1659 Q q e^{-0,026 t} \\ N'_C &= 4811 Q q (e^{-0,026 t} - 0,577 e^{-0,035 t}) \end{aligned} \quad (30)$$

La valeur moyenne de l'activité β pendant les 20 premières minutes de la décroissance sera donc :

$$a_{\beta_0}^{20} = \frac{1}{20} \int_0^{20} (\lambda_B N'_B + \lambda_C N'_C) dt \quad (31)$$

ce qui donne

$$a_{\beta_0}^{20} = 95,1 \text{ Q } q = 83,4 \% A_{\beta_0} \quad (32)$$

Si $\Delta \tau$ est l'écart entre l'arrêt du prélèvement et le début de la mesure il s'ensuit une erreur

$$\frac{\Delta a}{a} < 1,77 \cdot 10^{-2} \Delta \tau$$

ainsi

$$a_{\beta_1}^{21} = 80 \% A_{\beta_0} \text{ et } a_{\beta_0}^{22} = 76 \% A_{\beta_0}$$

Si l'on mesure la radioactivité β du prélèvement pendant les 20 minutes qui suivent l'arrêt de la filtration, on peut donc en déduire la concentration q du radon dans l'atmosphère par la formule :

$$q = \frac{a_{\beta}}{95,1 \text{ Q}} \quad (33)$$

où a_{β} est l'activité moyenne en désintégrations par minute,

Q est le débit de l'air exprimé en m^3 par minute,

si q était en désintégrations par minute et par m^3 .

Cette formule est approchée à environ 5 % près.

Application numérique :

Pour un débit $Q = 12 \text{ m}^3/\text{heure}$

$$= 0,2 \text{ m}^3/\text{minute}$$

Si l'on exprime q en $10^{-12} \text{ Ci}/m^3$, on a :

$$q \approx 0,0237 a_{\beta}$$

D'une façon plus générale, l'activité β peut se mettre sous la forme

$$A_{\beta} = \lambda_B N_B' + \lambda_C N_C' \quad (34)$$

$$A_{\beta} = Q q [211 e^{-0,026 t} - 97 e^{-0,035 t}] \quad (35)$$

ou, compte tenu de (24) :

$$A_{\beta} = A_{\beta_0} [1,85 e^{-0,026 t} - 0,85 e^{-0,035 t}] \quad (36)$$

La variation, en fonction du temps de $\frac{A_{\beta}}{A_{\beta_0}}$ est indiquée figure 1. On voit que après 200 minutes, l'activité β est inférieure à 1 % de ce qu'elle était à la fin du prélèvement ; après 5 heures de décroissance, elle n'est plus que le millième.

On voit donc que après 10 heures de décroissance, ce qui représente un facteur supérieur à 10^6 , les dérivés du radon à vie courte ne contribuent plus, d'aucune manière appréciable, à la radioactivité β d'un prélèvement d'aérosols, et cela quels qu'aient pu être les niveaux relatifs de la concentration atmosphérique du radon et des aérosols radioactifs artificiels, dans les limites indiquées au tableau II du chapitre II, 1.

A 1/2 - CONTRIBUTION DU DEPOT ACTIF DU THORON A LA RADIOACTIVITE β D'UN FILTRE

A 1/2.1 - De la même façon que pour le radon, les descendants de son isotope le thoron, comme lui gazeux, constituent une chaîne dont tous les éléments sont constitués par des métaux lourds (polonium, bismuth, plomb, thallium) naturellement solides à la température ordinaire. Toutefois dans le cas du thoron, la chaîne de désintégration s'arrête au thorium D (plomb 208, stable). Comme dans le cas du radon, nous pouvons confondre le thorium C' (période $2,9 \cdot 10^{-7}$ seconde) et le

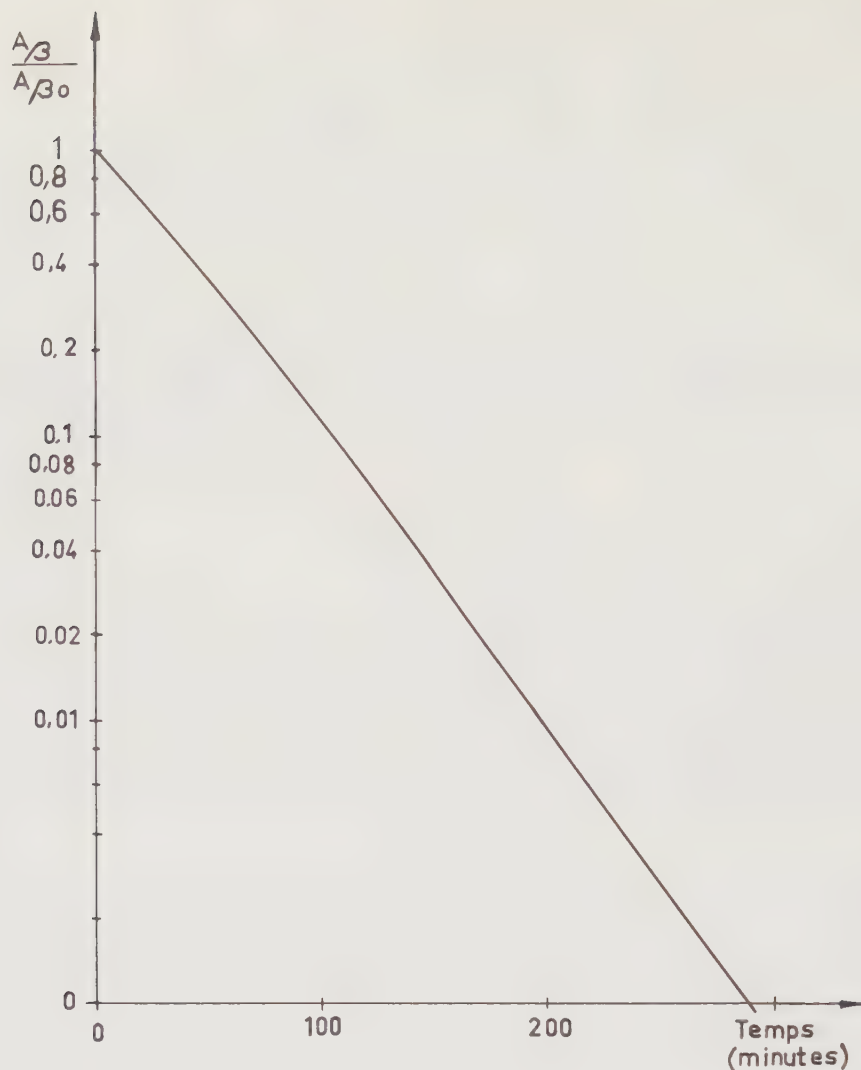
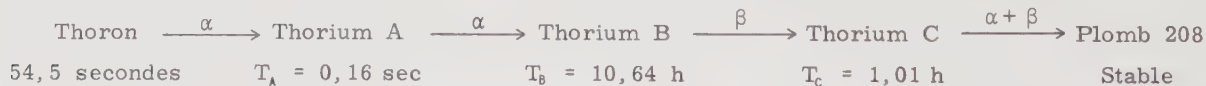


Fig. 1/A1 - Décroissance de l'activité β due au dépôt actif du radon.

thorium C" (période 3,1 minutes) qui doivent toujours être en équilibre avec le thorium C (bismuth 212, période 1,01 heure). On peut donc donner de la chaîne l'allure simplifiée suivante :



Comme nous l'avons indiqué au § II - 1/3.2, le thoron et le thorium A peuvent être beaucoup plus concentrés, au voisinage immédiat du sol que leurs descendants à plus longue période, qui ont le temps de diffuser dans l'atmosphère. La mesure des thorium B et C permettra néanmoins d'atteindre une concentration moyenne théorique du thoron dans l'atmosphère, qui correspond à la concentration que l'on pourrait mesurer, en présence d'une turbulence atmosphérique très élevée. Pour simplifier le langage et permettre de poursuivre l'analogie thoron-radon, c'est cette valeur théorique et moyenne que nous appellerons par définition, concentration du thoron dans l'atmosphère.

On peut alors écrire, par analogie à l'équation (1) :

$$n_o \lambda_o = n_A \lambda_A = n_B \lambda_B = n_C \lambda_C = q \quad (37)$$

Par analogie à l'équation (8), on aura :

$$N_A = \frac{Q q}{\lambda_A^2} (1 - e^{-\lambda_A t}) \quad (38)$$

Toutefois, si nous continuons à exprimer le temps en minutes, nous avons, cette fois

$$\lambda_A = \frac{0,693}{0,16} 60 = 260$$

L'équilibre est donc réalisé instantanément dans le cas du thorium A. Le nombre maximum d'atomes de thorium A accumulés sur le filtre est alors très faible, et leur désintégration produira par unité de temps $\lambda_A N_A$ atomes de thorium B, soit $\frac{Q q}{\lambda_A}$, chiffre près de 240 000 fois inférieur à la quantité d'atomes de thorium B amenés sur le filtre pendant la première minute de pompage, et qui n'est autre que $\frac{Q q}{\lambda_B}$. On pourra négliger complètement l'effet du thorium A sur l'activité β du filtre. Dans ces conditions, le nombre d'atomes de thorium B présents sur le filtre sera donné par une équation de même type que les équations (8) et (38), c'est-à-dire :

$$N_B = \frac{Q q}{\lambda_B^2} (1 - e^{-\lambda_B t}) \quad (39)$$

Le calcul du nombre d'atomes de thorium C présents sur le filtre s'effectue alors de façon identique au cas du radium B.

Par analogie à l'équation (12), on peut alors écrire

$$N_C = Q q \frac{\lambda_B + \lambda_C}{\lambda_B \lambda_C^2} \left\{ 1 - e^{-\lambda_C t} + \frac{\lambda_C^2}{\lambda_C^2 - \lambda_B^2} (e^{-\lambda_C t} - e^{-\lambda_B t}) \right\} \quad (40)$$

$$N_C = Q q \frac{\lambda_B + \lambda_C}{\lambda_B \lambda_C^2} \left\{ 1 - \frac{\lambda_C^2}{\lambda_C^2 - \lambda_B^2} e^{-\lambda_B t} \left[1 - e^{(\lambda_B - \lambda_C)t} + \frac{\lambda_C^2 - \lambda_B^2}{\lambda_C^2} e^{(\lambda_B - \lambda_C)t} \right] \right\} \quad (41)$$

$$N_C = Q q \frac{\lambda_B + \lambda_C}{\lambda_B \lambda_C^2} \left\{ 1 - \frac{\lambda_C^2}{\lambda_C^2 - \lambda_B^2} e^{-\lambda_B t} \left[1 - \frac{\lambda_B^2}{\lambda_C^2} e^{(\lambda_B - \lambda_C)t} \right] \right\}$$

Compte tenu de ce que

$$\frac{\lambda_B^2}{\lambda_C^2} = \left(\frac{T_C}{T_B} \right)^2 \neq 0,9 \cdot 10^{-2}$$

et de ce que $e^{(\lambda_B - \lambda_C)t}$ est au plus égal à 1, on peut écrire

$$N_C \neq \frac{Q q}{\lambda_C} \frac{\lambda_B + \lambda_C}{\lambda_B \lambda_C} (1 - e^{-\lambda_B t}) \quad (42)$$

En adoptant toujours la minute comme unité de temps, on a :

$$\lambda_A = 260$$

$$\lambda_B = 0,00108$$

$$\lambda_C = 0,0114$$

d'où l'on tire

$$N_A = 15 \cdot 10^{-6} Q q (1 - e^{-260 t}) \quad (43)$$

$$N_B = 86 \cdot 10^4 Q q (1 - e^{-0,001 t}) \quad (44)$$

$$N_C = 8,9 \cdot 10^4 Q q (1 - e^{-0,001 t}) \quad (45)$$

L'équilibre est réalisé à 99 % au bout de 4 600 minutes, soit un peu plus de trois jours de pompage. Au bout de 24 heures, temps usuel des prélèvements, on a atteint seulement 76,3 % de l'équilibre. L'activité β du filtre est alors :

$$A_{\beta_0} = (\lambda_{\beta} N_{\beta} + \lambda_c N_c) 0,763 \quad (46)$$

$$A_{\beta_0} = 1483 Q q \quad (47)$$

où A_{β_0} est l'activité, exprimée en désintégrations par minute, après un pompage de 24 heures, avec un débit Q , dans une atmosphère où la concentration théorique du thoron est q .

L'activité α du filtre est alors, en négligeant la part du thorium A :

$$A_{\alpha_0} = 0,763 \lambda_c N_c = 774 Q q \quad (48)$$

Le rapport des activités β et α est alors, après 24 heures de pompage, égal à environ 1,9.

A 1/2.2 - La radioactivité du filtre décroît alors lentement, suivant des lois analogues au cas du radon. Par analogie avec l'équation (26) nous écrivons :

$$N_{\beta}^t = b e^{-0,001 t} \quad (49)$$

avec

$$b = 65,6 \cdot 10^4 Q q$$

Par analogie avec les équations (27) et (28), on aura :

$$N_c^t = b \frac{\lambda_{\beta}}{\lambda_c - \lambda_{\beta}} e^{-\lambda_{\beta} t} + \left(c - b \frac{\lambda_{\beta}}{\lambda_c - \lambda_{\beta}} \right) e^{-\lambda_c t} \quad (50)$$

avec $c = 6,8 \cdot 10^4 Q q$

$$N_c^t \neq 6,8 \cdot 10^4 e^{-\lambda_{\beta} t} = 6,8 \cdot 10^4 e^{-0,001 t}$$

d'où finalement

$$N_{\beta}^t = 65,6 \cdot 10^4 Q q e^{-0,001 t} \quad (51)$$

$$N_c^t = 6,8 \cdot 10^4 Q q e^{-0,001 t}$$

D'une façon générale, l'activité β due au dépôt actif du thoron pourra donc se mettre, dans les prélèvements de 24 heures, sous la forme suivante :

$$A_{\beta} = \lambda_{\beta} N_{\beta}^t + \lambda_c N_c^t \quad (52)$$

$$A_{\beta} = A_{\beta_0} e^{-0,001 t} = 1483 Q q e^{-0,001 t} \quad (53)$$

Après 3 heures de décroissance, temps qui correspondait à la disparition de 98,5 % du radon, l'activité due au thoron sera encore de 83,5 % de l'activité trouvée à la fin du prélèvement, ce qui correspond pour le radon à la perte d'activité moyenne observée, durant un comptage de 20 minutes, débutant immédiatement après la fin du prélèvement (voir équation 32).

Après 24 heures de décroissance, alors que la contribution du dépôt actif du radon à vie courte est devenue inexistante, il reste 23,7 % d'activité due au dépôt actif du thoron. Après cinq jours de décroissance, l'activité résiduelle sera inférieure à 0,1 % de l'activité initiale.

Application numérique :

Pour un débit $Q = 12 \text{ m}^3/\text{heure} = 0,2 \text{ m}^3/\text{minute}$.

$$q = \frac{A_{\beta_0}}{1483 Q} = \frac{A_{\beta_{180}}}{\frac{83,5}{100} 1483 Q}$$

Si on exprime q en 10^{-12} curie par m³, on aura

$$q = 0,00152 A_{\beta_0} = 0,00182 A_{\beta_{180}}$$

A 1/3 - CONTRIBUTION DES EMETTEURS RADIOACTIFS β DE PERIODE MOYENNE ET LONGUE

Contrairement au cas des dépôts actifs à vie courte du radon et du thoron, les produits de fission ainsi que le radium D et ses descendants s'accumulent sur le filtre durant tout le prélèvement, la décroissance en cours de prélèvement étant négligeable. Suivant les notations que nous avons adoptées précédemment, on aura donc :

$$A_{\beta_0} = Q q \theta$$

où θ est la durée du prélèvement

Q le débit de la pompe

q l'activité par m³ d'air

A_{β_0} l'activité β du filtre à la fin du prélèvement.

La décroissance de cette activité ainsi que nous l'avons vu au § II - 1/7.2 suivra une loi complexe, résultant d'une somme d'exponentielles. Nous pouvons alors écrire que la radioactivité du filtre est la résultante de trois catégories d'aérosols d'activités respectives

q' (radon et dépôt actifs à vie courte)

q" (thoron et dépôt actif)

q''' (aérosols radioactifs artificiels)

Si la durée du prélèvement a été de 24 heures, nous avons une activité β telle que :

A la fin du prélèvement (ou plutôt une minute après)

$$A_{\beta_1} = Q [114 q' + 1483 q'' + 1440 q''']$$

et cette activité décroît en fonction du temps suivant la loi :

$$A_{\beta} = Q \{ 211 q' [1 - 0,46 e^{-0,009 t}] e^{-0,026 t} + 1483 q'' e^{-0,001 t} + 1440 q''' t^{-1,2} \}$$

L'étude de la décroissance du filtre permet, connaissant le débit Q de l'installation de calculer les contributions des trois sortes d'éléments, et d'en déduire leurs concentrations atmosphériques moyennes durant le prélèvement (ou pour le radon, durant les 3 dernières heures du prélèvement), q', q'', et q'''. En pratique, on procédera de la façon suivante :

Immédiatement ou une minute environ après la fin du prélèvement on effectue la mesure de l'activité durant 20 minutes.

L'activité moyenne durant cette mesure est donnée par :

$$\bar{a}_{\beta(1', 21')} = Q [95 q' + 1483 q'' + 1440 q''']$$

Une deuxième mesure est effectuée 3 heures après le prélèvement. L'activité mesurée au cours de cette mesure est donnée par :

$$\bar{a}_{\beta(3h,)} = Q [1,7 q' + 1238 q'' + 1440 q''']$$

Une troisième mesure est effectuée 24 heures après le prélèvement. La contribution du radon est alors devenue négligeable :

$$\bar{a}_{\beta(24h,)} = Q [351,5 q'' + 1440 q''']$$

Une quatrième mesure est effectuée après un délai compris entre 5 et 7 jours. Seule intervient alors la radioactivité artificielle (sauf intervention exceptionnelle du radium E). On a alors :

$$\bar{a}_{\beta(5 \text{ jours})} = 1440 \text{ q}''' \text{ Q}$$

Des mesures ultérieures permettent alors d'étudier l'âge apparent des produits de fission, conformément à la loi générale de décroissance indiquée au § II - 1/7. 2.

Ces quatre égalités permettent d'atteindre aisément les concentrations en différents éléments. Dans la grande majorité des cas d'importantes simplifications basées sur les valeurs relatives de q' , q'' et q''' permettent de réduire les ultimes calculs, aussi nous ne donnerons pas de formules générales.

ANNEXE 2

(Ch. II-2)

DESCRIPTION ET PERFORMANCES DU COMPTEUR β A SCINTILLATIONS A GRANDE SURFACE ET FAIBLE MOUVEMENT PROPRE

A 2/1 - DIMINUTION DU BRUIT DE FOND D'UN COMPTEUR A SCINTILLATIONS

Examinons les différentes causes du bruit de fond et les moyens de le réduire :

1/ Radioactivité ambiante.

C'est la radioactivité β et γ des poussières de l'air autour du compteur, du radon qui se dégage du sol, ou des gaz radioactifs d'origine artificielle.

On peut s'en protéger de deux façons :

a) en plaçant l'installation dans un château de plomb,

b) en remarquant que le rendement du scintillateur aux γ est en gros proportionnel à son volume, et sa surface étant fixée à 100 cm², on ne peut réduire que sa hauteur. Le parcours des β dans le scintillateur plastique limite cette diminution. Si on désire un compteur proportionnel, on ne peut pas descendre au-dessous de 3 mm. En réalité, pour un comptage global, il est possible de descendre jusqu'à des épaisseurs inférieures à 1 mm.

2/ Rayonnement cosmique.

La protection de plomb atténue les β et γ des particules en suspension dans l'air, mais ne diminue pas le bruit de fond provenant du rayonnement cosmique.

Comme il y a au niveau du sol, environ une particule cosmique par minute et par cm², il y a intérêt à éliminer ce rayonnement.

Pour cela on pourrait mettre une très grande épaisseur de plomb, solution impraticable par l'encombrement qu'elle entraîne.

Il est beaucoup plus simple de disposer d'un second compteur monté en anticoincidence avec le compteur proprement dit. Les deux compteurs sont face à face. Les cosmiques sont les seuls particules à avoir à l'état naturel, une énergie suffisante pour traverser les deux compteurs à la fois. Un dispositif électrique permet de ne pas compter les impulsions lorsqu'elles proviennent simultanément des deux compteurs, donc élimine le comptage dû au rayonnement cosmique.

3/ Contamination du photomultiplicateur.

Elle est due au fait que le verre employé dans sa fabrication (comme la plupart des verres) contient un certain nombre de substances radioactives naturelles dont le potassium 40 et des dérivés de l'uranium. La plupart de ces corps sont émetteurs β . Ces rayons β arrivant sur le scintillateur y provoquent une scintillation vue par le photomultiplicateur et sont comptés de la même façon que les β de la source à mesurer. On peut éliminer ce rayonnement parasite en plaçant entre la photocathode et le scintillateur un conduit de lumière en plexiglass de 2 mm, opaque aux β provenant du verre et de coefficient de transmission peu différent de 1 pour la lumière allant du scintillateur vers le photomultiplicateur.

Il existe un autre moyen qui consiste à employer un photomultiplicateur exempt de contamination (par exemple à fenêtre de quartz).

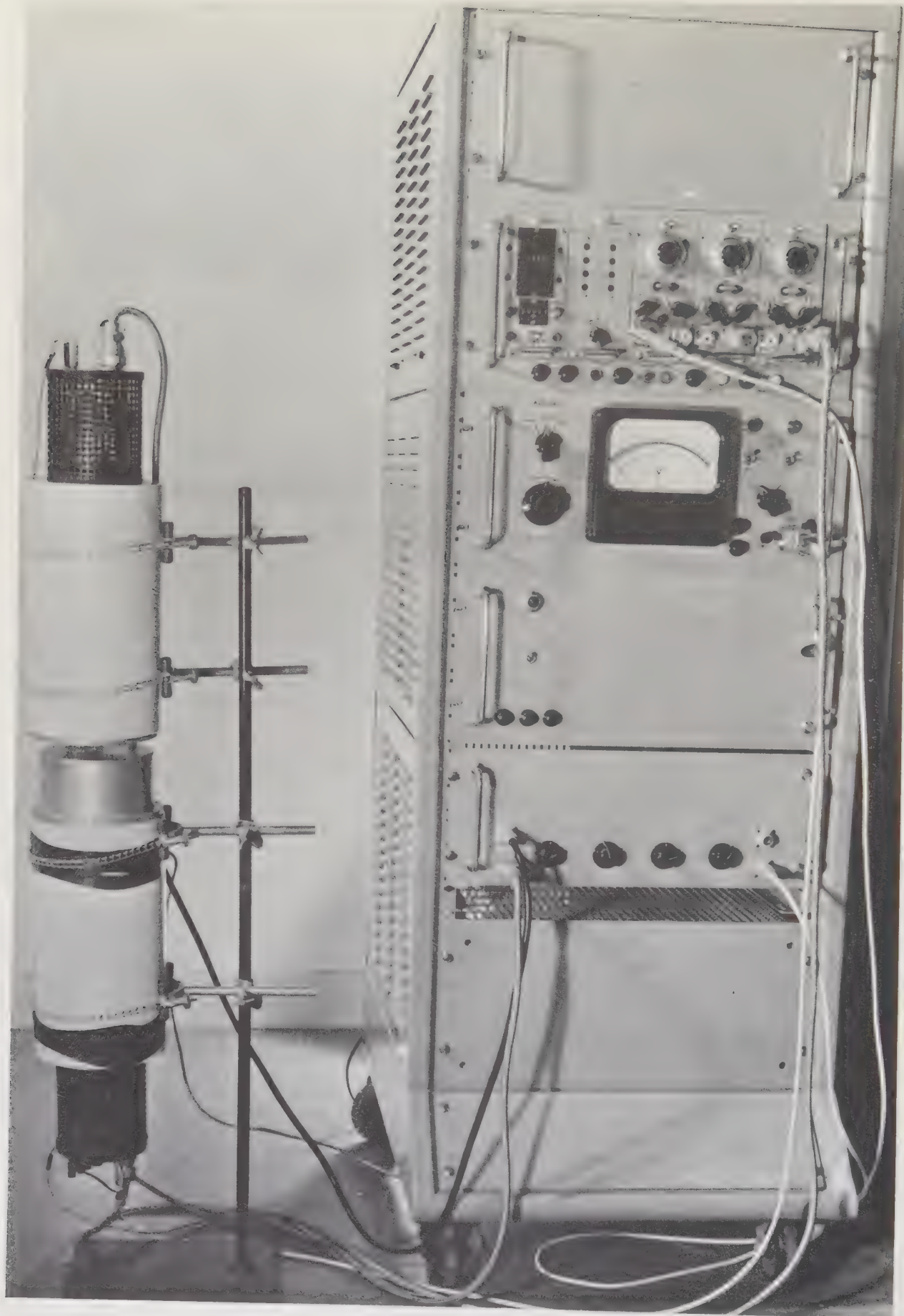


Figure 1/A-2 - Compteur β à scintillations anticosmique.

A 2/2 - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE

Il se compose donc finalement de deux compteurs à scintillations montés en anticoïncidence (figure 1).

Le premier utilise un scintillateur plastique mince (diamètre 125 mm et épaisseur 0,5 à 3 mm) isolé du photomultiplicateur par un conduit de lumière en plexiglass de 2 mm d'épaisseur, et muni d'une fenêtre en aluminium mince (de 0,6 à 4 mg/cm²).

Le deuxième utilise un scintillateur plastique de hauteur 80 mm et de même diamètre que le précédent.

Une plaque de cuivre isole les deux scintillateurs et sert de réflecteur β au premier, afin d'accroître le rendement géométrique.

L'électronique associée à cet ensemble comporte une alimentation THT unique pour les deux P. M. (de façon à antioïncider les parasites), deux préamplificateurs, deux amplificateurs, un sélecteur d'anticoïncidences à seuil réglable, et un dispositif classique de comptage des impulsions électriques (figure 2).

A 2/3 - PERFORMANCES

Une étude complète de ce type de compteur a été réalisée pour des scintillateurs de surface 20 cm²/B3/. En ce qui concerne l'appareil de surface 100 cm², dans les conditions jugées optimales, nous avons obtenu les performances suivantes :

Surface	100 cm ²
Mouvement propre	14 coups par minute
Rendement	10 % pour le potassium 40

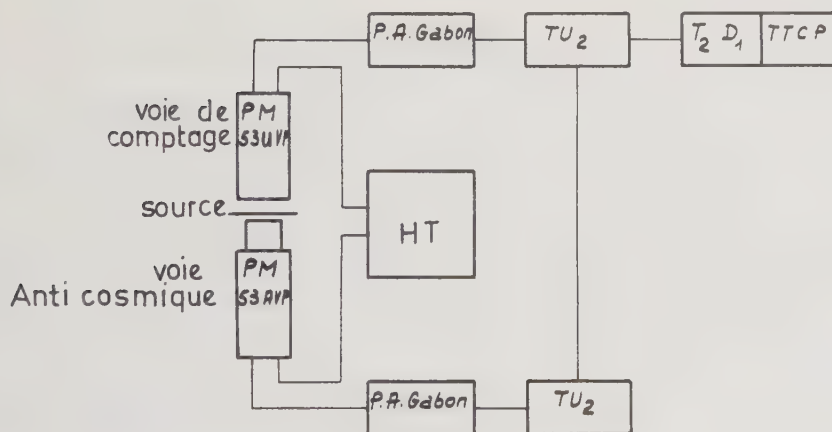


Fig. 2/A2 - Schéma du dispositif de comptage β anticosmique à scintillation.

Le faible rendement provient :

1/ de la trop grande épaisseur des fenêtres utilisées (4 mg/cm²) : des fenêtres plus minces étaient trop fragiles pour être couramment utilisées en cette superficie.

2/ des hétérogénéités de rendement de la photocathode du P. M. 54 AVP, dans les régions éloignées du centre.

Malgré ces insuffisances, cet appareil a permis d'effectuer certaines mesures, difficiles à réaliser avec les compteurs ordinaires.

ANNEXE 3

(Ch. II-2)

LISTE DES STATIONS DE PRELEVEMENTS DES AEROSOLS ET DESCRIPTION DE LEUR EQUIPEMENT

A 3/1 - DESCRIPTION DES INSTALLATIONS

Aspirateur S. E. V. (filtre fixe).

Débit 35 m³/heure à travers un filtre de 100 cm² type "bleu" de chez Poëlmann Schneider (65 f/cm²).

Rendement du papier filtre :

100 % pour les particules > 1 μ

75 % pour les particules # 0,3 μ

Pompe DOLLEY (filtre fixe).

Débit 12 m³/heure à travers un filtre de même type.

Surface 10 cm² pour les stations SEP.

Surface 80 cm² pour les stations Faculté des Sciences.

Enregistreur d'aérosols radioactifs Landis et Gyr* (filtre mobile).

Vitesse de déroulement du papier filtre : environ 40 mm/jour.

Débit d'air : 30 m³/heure à travers un filtre de surface 10 cm² type Schleicher et Schuell n° 2430.

Rendement : 70 pour cent pour particules de 0,4 μ.

Une première mesure est effectuée par l'appareil lui-même. Les filtres sont ensuite mesurés à nouveau, entre 15 et 45 jours après le prélèvement, au moyen d'un compteur GM 8 AP 7 (cf. ci-dessous).

Compteur Geiger Muller type 8 AP 7 (L. C. T.).

Fenêtre de mica épaisseur < 2 mg/cm².

Surface : 8 cm².

Bruit de fond : environ 15 cpm sous 5 cm de plomb.

Rendement global de comptage pour une source de surface 10 cm² en couche mince : 18 à 20%.

Etalon : potassium naturel (K 40), énergie : 1,4 MeV.

Appareil à faible mouvement propre type E. C. F. 103 (Intertechnique).

Equippé de compteurs à circulation type CC 25.

Fenêtre de mylar aluminisé, épaisseur : 1 mg/cm²

surface : 5 cm²

* En abrégé dans le tableau A 3/3 : L. & G.

Bruit de fond : 1,7 cpm.

Rendement pour une source de surface 10 cm² : 30 pour cent en couche mince.

Etalon : potassium naturel, énergie 1,4 MeV.

Utilisé pour les comptages des filtres provenant des frégates météorologiques depuis Décembre 1960.

Scintillateur de grande surface.

Pour le comptage direct des filtres.

Surface du scintillateur plastique : 100 cm².

Epaisseur : 1,5 mm.

Photomultiplicateur : 54 AVP (Radiotechnique).

Bruit de fond avec dispositif anti-cosmique : 15 cpm.

Rendement pour une source de 100 cm² : 10 pour cent.

Etalon : potassium naturel.

Installation utilisée depuis Mai 1961.

A 3/2 - ORGANISMES PARTICIPANT AUX PRELEVEMENTS ET MESURES D'AEROSOLS RADIO-ACTIFS ARTIFICIELS

1/ Prélèvement effectué par le Service National de la Protection Civile et la Météorologie Nationale.

2/ Prélèvement effectué par la Météorologie Nationale.

3/ Prélèvement effectué par la Faculté des Sciences de Paris (Laboratoire du Pr. Vassy ou ses correspondants).

4/ Prélèvement effectué par le S. E. P. du C. E. N. Saclay.

5/ Prélèvement effectué par les Expéditions Polaires Françaises.

6/ Prélèvement effectué par l'O. R. S. T. O. M.

7/ Prélèvement et mesures effectués par le correspondant C. E. A. à Dakar.

8/ Prélèvement effectué par le Laboratoire des Cosmiques.

9/ Mesures effectuées par le S. E. P. du C. E. N. Saclay.

10/ Mesures effectuées par la Faculté des Sciences - Laboratoire du Pr. Vassy.

11/ Mesures effectuées par la Météorologie Nationale (Kerguelen) puis par les Terres Australes et Antartiques Françaises.

12/ Mesures effectuées par les Expéditions Polaires (Terre Adélie).

LISTE DES STATIONS EXPLOITEES PAR LE SERVICE D'ELECTRONIQUE
PHYSIQUE DU C. E. A.

Station	Coordonnées géographiques			Appareil de prélèvement	Appareil de mesure	Observation
	Latitude	Longitude	Altitude			
Point "A"	62° 00' N	33° 00' W	10 m	Dolley (2)	G. M. (9)	ou ECF 103
Point "J"	52° 30' N	20° 00' W	10 m	Dolley (2)	G. M. (9)	
Lille	50° 34' N	3° 6' E	44 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Cherbourg	49° 39' N	1° 38' W	8 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Paris Tour Eiffel	48° 52' N	2° 18' E	310 m	Aspisev (3)	P. M. (10)	
Paris Quai Branly	48° 52' N	2° 18' E	32 m	Aspisev (3)	P. M. (10)	
Val Joyeux	48° 49' N	2° 1' E	114 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Saclay	48° 43' N	2° 9' E	160 m	Aspisev (4)	G. M. (9) puis P. M.	
Nancy	48° 42' N	6° 13' E	204 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Rennes	48° 4' N	1° 43' W	37 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Bâle-Mulhouse	47° 36' N	7° 31' E	262 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Tours	47° 25' N	0° 42' E	97 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Garchy	47° 17' N	3° 04' E	190 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Dijon	47° 16' N	5° 16' E	225 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Clermont- Ferrand	45° 48' N	3° 09' E	332 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Point "K"	45° 00' N	16° 00' W	0 m	Dolley (2)	G. M. (9)	ou ECF 103
Bordeaux	44° 50' N	0° 42' W	48 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Mont Ventoux	44° 10' N	5° 17' E	1 900 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Monfavet	43° 55' N	2° 33' E	28 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Nîmes	43° 51' N	4° 24' E	59 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Toulouse	43° 37' N	1° 22' E	152 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Biarritz	43° 24' N	1° 32' W	76 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Bagnères de Bigorre	43° 03' N	0° 8' E	550 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Pic du Midi	42° 56' N	0° 8' E	2 860 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Perpignan	41° 44' N	2° 52' E	44 m	L. & G. (1)	G. M. (9)	
Beni Abbès	30° 8' N	2° 1' W	500 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Tamanrasset	22° 47' N	5° 31' E	1 377 m	Dolley (3)	P. M. (10)	
Dakar	14° 44' N	17° 30' W	23 m	Dolley (7)	G. M. (7)	
Pointe Noire	5° S	10° E	2 m	Aspisev (6)	G. M. (9)	
Nouméa	21° S	165° E		Dolley (6)	ECF 103 (9)	
Iles Kerguelen	49° 20' S	70° 13' E	14 m	Dolley (2)	G. M. (11)	
Terre Adélie	65° 30' S	144° E	20 m	Dolley (5)	G. M. (12)	

ANNEXE 4

(Ch. III-1)

MESURE DU DEBIT DES ASPIRATEURS EN HAUTE ALTITUDE

La mesure du débit pour différentes valeurs de la pression est délicate : la plupart des débitmètres étalonnés ne fonctionnent qu'au voisinage de la pression atmosphérique et d'autre part, ils introduisent une perte de charge qui n'existe plus au moment du prélèvement proprement dit. Finalement, nous avons réussi à mesurer le débit, par l'intermédiaire de la mesure de la vitesse de la veine d'air, à la sortie du compresseur, au moyen d'un tube de Pitot. On sait que la pression d'arrêt Δp mesurée par ce tube est directement reliée à la vitesse v du fluide, par la formule :

$$\Delta p = \frac{1}{2} \rho v^2$$

où ρ est la masse spécifique du fluide, grossièrement proportionnelle à la pression statique. Ces mesures exigent beaucoup de soin, une mauvaise orientation du tube de Pitot dans le filet d'air pouvant provoquer d'importantes erreurs. De plus, les mesures deviennent très difficiles, à basse pression, quand ρ tend vers 0. La variation du débit avec l'altitude est indiquée figures 1 et 2. On voit que celle-ci est assez faible, par rapport à la variation du poids d'air pompé (égal au produit du débit par la densité de l'air).

Toutes ces mesures ont été réalisées à l'intérieur d'une enceinte étanche de faibles dimensions (1 500 litres), suivant le schéma indiqué figure 3. La turbulence de l'air, à l'intérieur de l'enceinte, est susceptible de provoquer des erreurs d'étalonnage, difficiles à chiffrer, mais que nous supposons peu importantes.

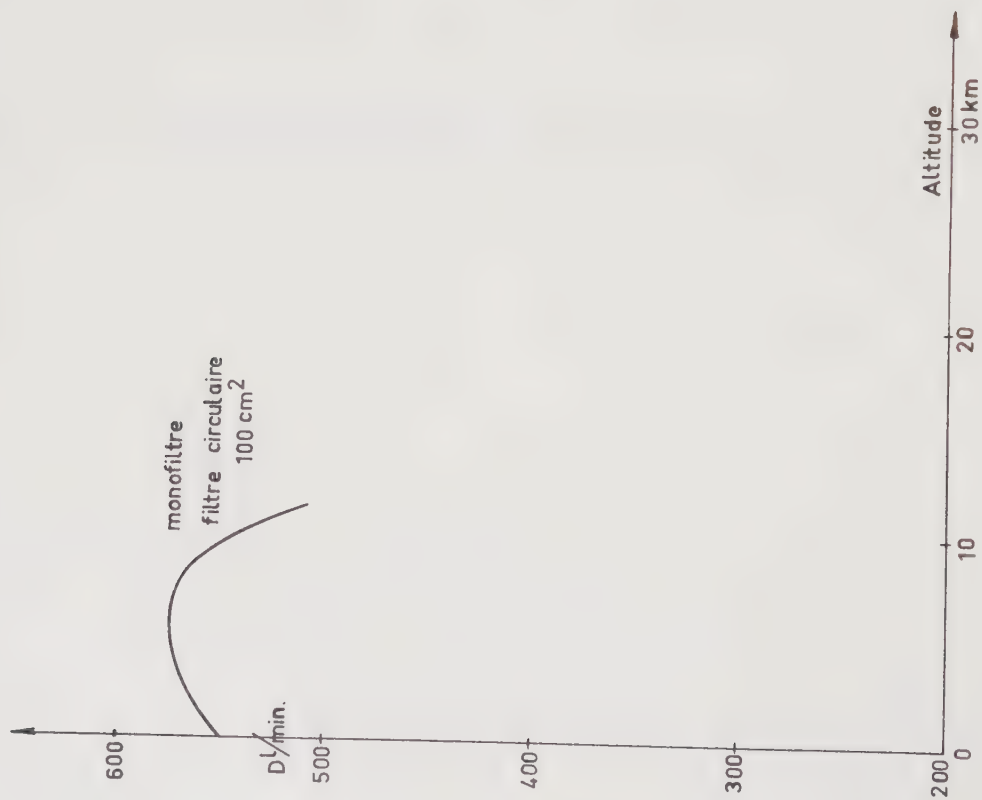


Fig. 1/A4 - Débit des aspirateurs utilisés en haute altitude.

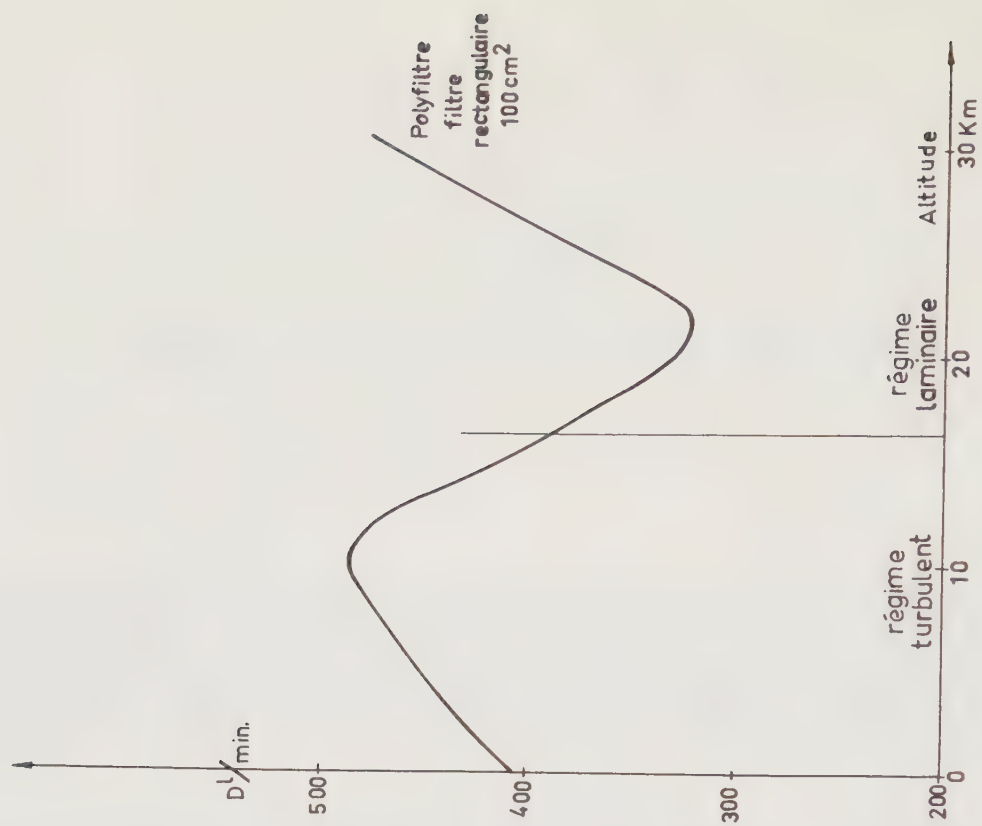


Fig. 2/A4 - Débit des aspirateurs utilisés en haute altitude.

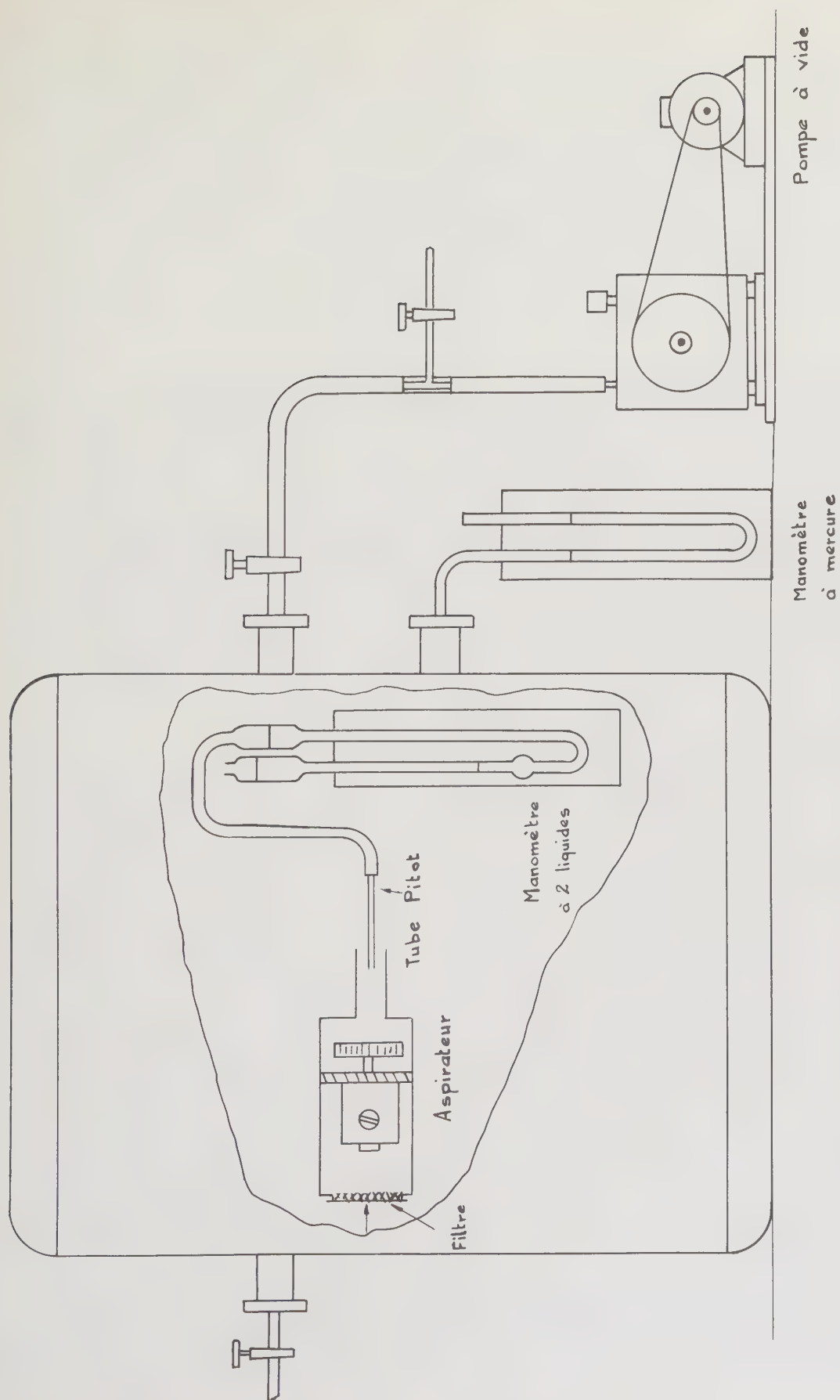


Fig. 3/A4 - Dispositif de mesure du débit.

ANNEXE 5

(Ch. III-1)

MESURE DU RENDEMENT DE COLLECTION DES FILTRES A HAUTE ALTITUDE

Les mesures de rendement de collection ont été faites par comparaison avec un filtre de rendement très élevé (supérieur à 99 %) qui est le filtre Poellmann-Schneider "Rose". Les deux filtres de 40 cm² étaient placés en série (le filtre étudié étant en amont) dans un long tube dans lequel on faisait régner une pression faible, réglable (figures 1 et 2).

On peut produire à une extrémité des aérosols de chlorure d'ammonium dont la dimension moyenne est de 3 μ , et qui se déplacent dans le sens du courant d'air et sont arrêtés par l'un des deux filtres. Le dosage des ions Cl⁻ recueillis par chaque filtre est effectué par la méthode volumétrique de Mohr, c'est-à-dire par formation de chlorure d'argent, à partir de nitrate d'argent en présence de chromate de potassium, et indication de la fin de la réaction par formation de chromate d'argent, rouge persistant.

Les résultats obtenus indiquaient des rendements de 96 % pour une charge sur le filtre > 7 $\mu\text{g} / \text{cm}^2$ et de 60 % pour une charge de 0,3 $\mu\text{g} / \text{cm}^2$, pour toutes les altitudes comprises entre 0 et 24 km (figure 3).

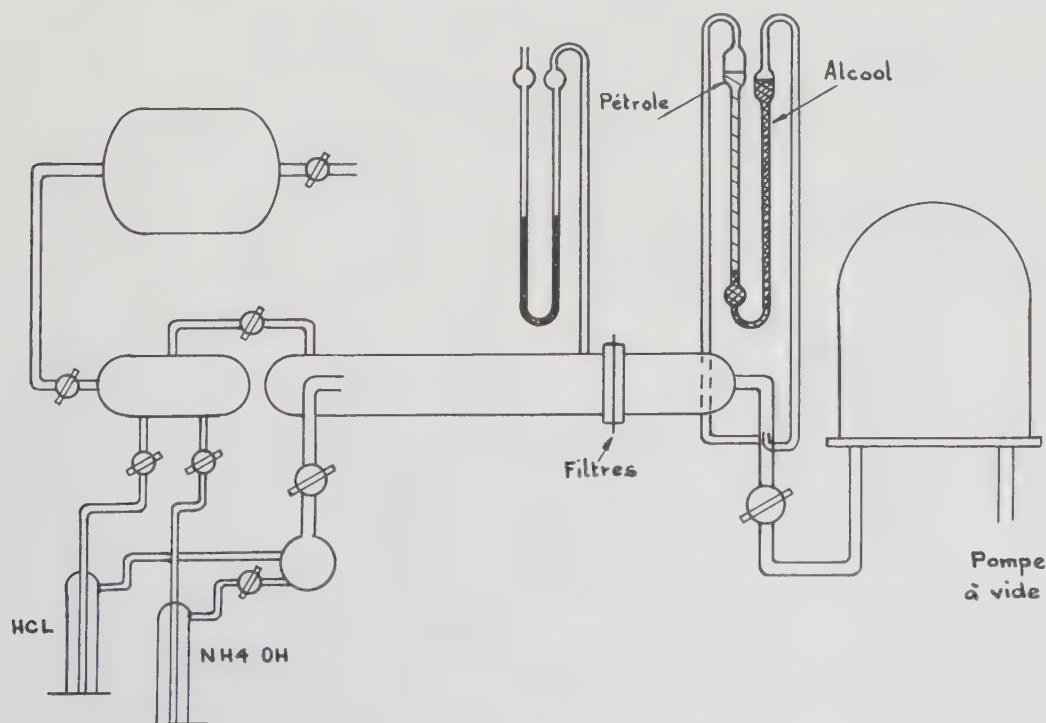


Fig. 1/A5 - Dispositif de mesure des rendements de filtration.

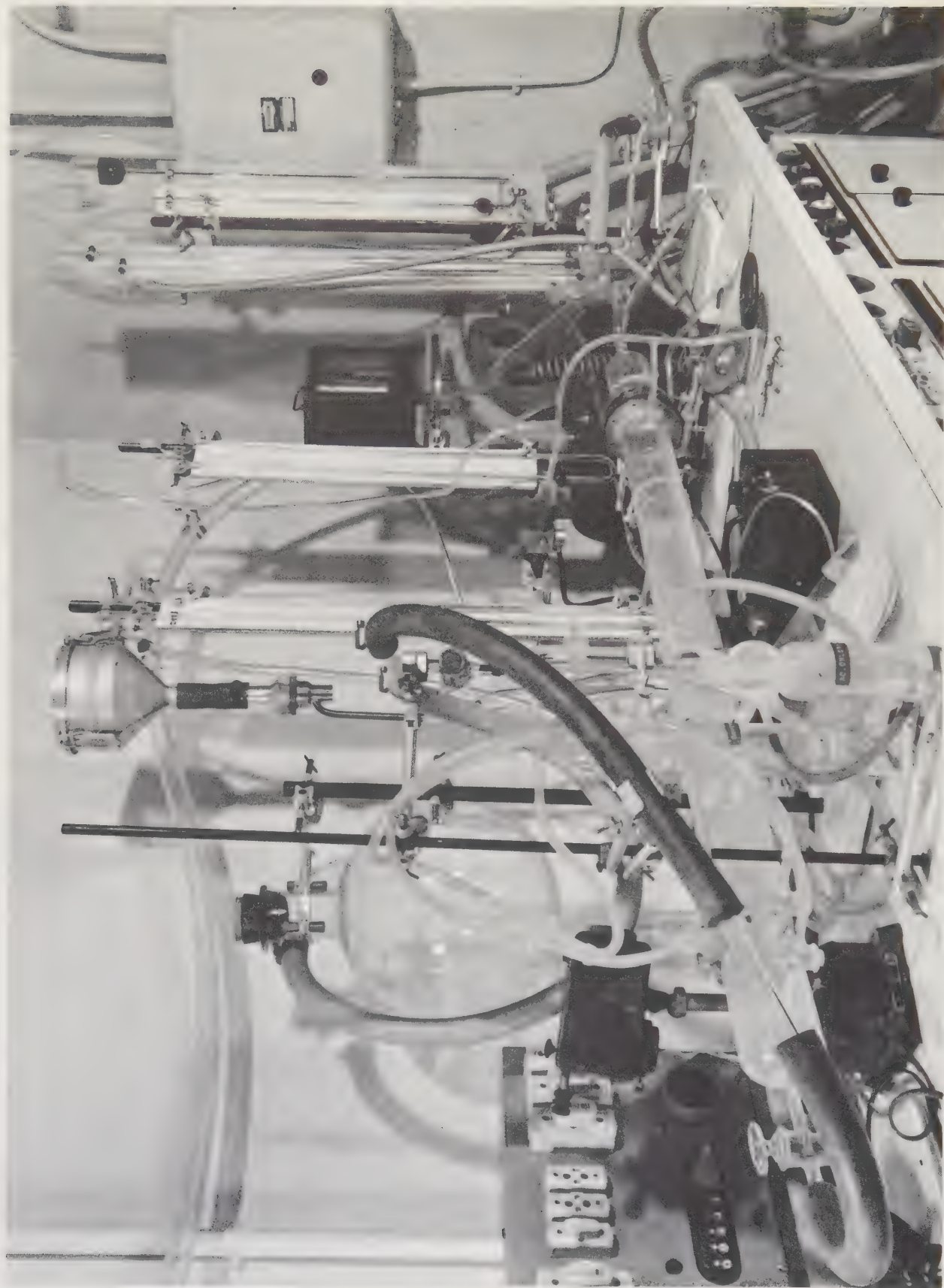


Figure 2/A. 5 - Dispositif de mesure du rendement des filtres dans la stratosphère.



Fig. 3/A5 - Rendement de filtration du filtre bleu Poelman-Schneider $\phi = 70$ mm. Altitudes = 0 à 26 km.

Les mesures ont été reprises ensuite avec les aérosols très fins que constitue le dépôt actif du radon et ceux, un peu plus gros, que sont les aérosols radioactifs artificiels ($0,01$ à 1μ). Cette fois la charge des filtres était innappréciable. Les aérosols normalement présents dans l'atmosphère du laboratoire pénétraient dans le tube par une fuite réglable. La présence de cette fuite nous a interdit de descendre en pression en dessous de 35 mm de mercure, ce qui correspond à une altitude de 18,5 km. La comparaison des radioactivités instantanées ou retardées des deux filtres nous a conduit à adopter dans ces deux cas un rendement de collection uniforme voisin de 45 %, chiffre que nous utiliserons, sauf exception, pour l'établissement de tous les résultats ultérieurs. On peut d'ailleurs vérifier, sur la figure 3 que le paramètre essentiel semble finalement être la charge du filtre, les différents points expérimentaux portés sur cette figure ayant été obtenus pour les altitudes les plus diverses, entre 0 et 24 km.

ANNEXE 6

(Ch. III-1)

RENDEMENT DE FILTRATION DES GAZES

A 6/1 - Le ballon a été largué le 31 Janvier 1962 à 10 h 30 du matin à Magny-les-Hameaux. L'ensemble est monté à 9 500 mètres d'altitude et, est retombé vers 14 heures à 200 kilomètres du point de départ.

Le matériel a été récupéré immédiatement, puis ramené à Saclay, où les prélèvements ont subi les traitements suivants :

1/ Le filtre de l'aspirateur (100 cm²)

- a) Mesure directe β globale (compteur à scintillations) $\longrightarrow$ 173 pCi.
- b) Calcination.
- c) Mesure β globale au compteur G. M. $\longrightarrow$ 161 pCi.

2/ La grande gaze (2,45 m²)

- a) Spectre γ - I $\longrightarrow$ pics γ caractéristiques des produits de fission jeunes.
- b) Calcination.
- c) Mesure β globale au compteur G. M. $\longrightarrow$ 4 700 pCi.

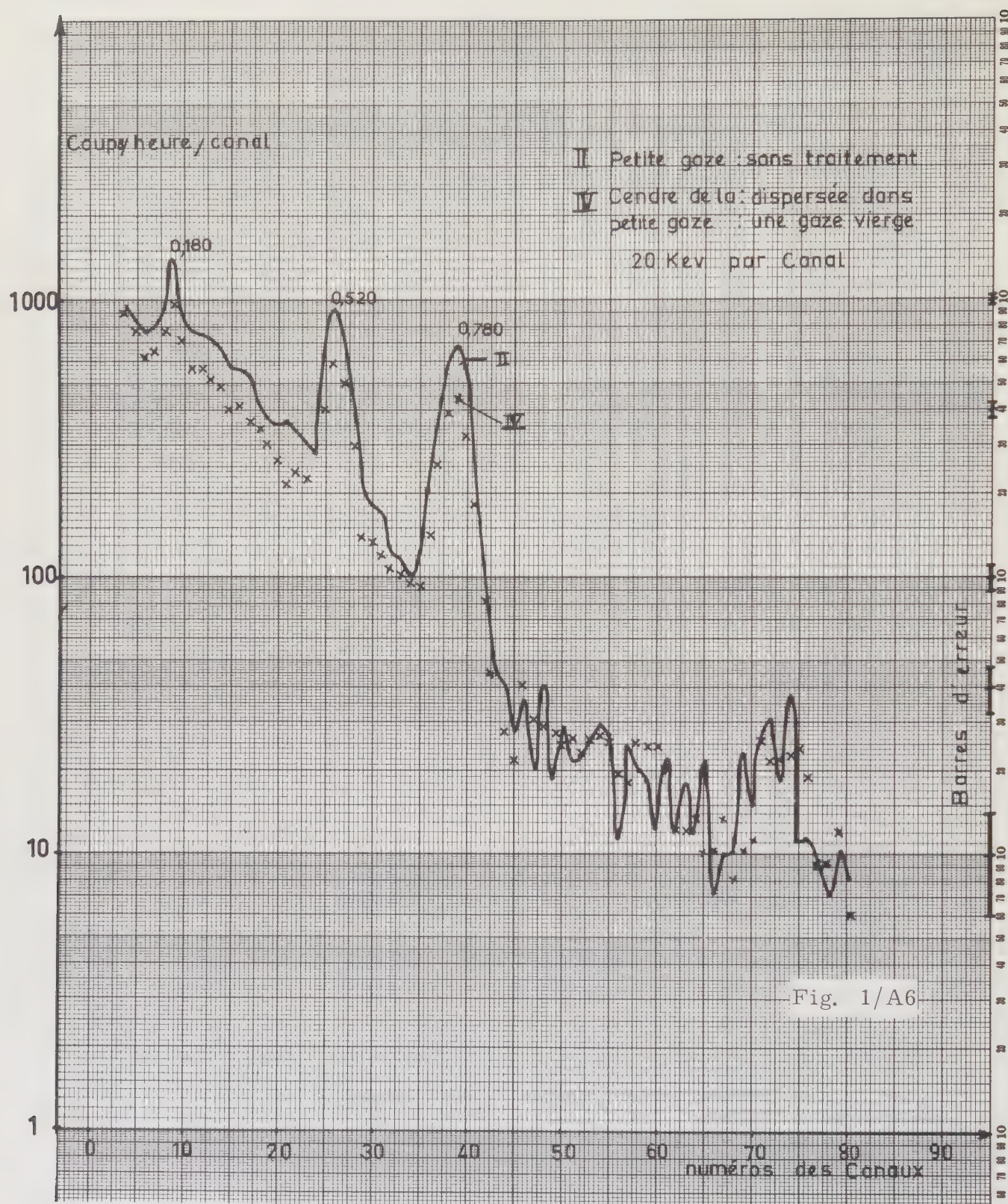
3/ La petite gaze (0,61 m²)

- a) Spectre γ - II (figure 1).
- b) Calcination.
- c) Spectre γ - III.
- d) Mesure β globale au compteur G. M. $\longrightarrow$ 1 700 pCi.
- e) Dispersion des cendres dans une gaze vierge identique.
- f) Spectre γ - IV (figure 1).
- g) Calcination.
- h) Mesure β globale au compteur G. M. $\longrightarrow$ 1 540 pCi.
- i) Spectre γ - V.

Tous les spectres γ ont été effectués en une heure de comptage. Le bruit de fond n'a pas été déduit en raison de sa faible importance, comparée aux taux de comptage obtenus à l'exception de la zone à 1,46 MeV, correspondant au potassium 40 où le comptage semble dû essentiellement au mouvement propre de l'appareil.

A 6/2 - PERTES PAR CALCINATION

Les traitements effectués sur la *petite gaze* avaient pour but l'évaluation des pertes de comptage dues au traitement des gazes :



1/ Mesure β : entre la première et la deuxième calcination, la perte de comptage est de 9,3 %. Mais il faut tenir compte du fait que les produits les plus volatils ont été perdus lors de la première calcination : la perte est donc un peu supérieure à ce chiffre.

2/ Mesure γ : après la première calcination, les cendres ont été réparties dans une nouvelle gaze, vierge, pour obtenir des conditions géométriques voisines du cas initial. La perte de comptage est de :

- du 4ème au 64ème canal (80 keV à 1 280 keV) : 25,6 %.

- dans le pic à 0,520 MeV : 40 %.

- dans le pic à 0,780 MeV : 38 %.

L'écart entre les pertes de comptage par pic et la perte moins importante de comptage γ global indique que la géométrie adoptée dans la gaze reconstituée, est moins bonne que dans le premier cas.

On peut donc admettre que les pertes sont comprises entre 9,3 % et 25,6 % et plus probablement voisines de 15 %, chiffre que nous avons adopté.

A 6/3 - ESTIMATION DU RENDEMENT DE COLLECTION

La durée totale du prélèvement effectué sur filtre fixe a été de 205 minutes avec un débit de 300 l/mn environ. L'altitude atteinte est de 9 500 mètres. Ceci nous donne, compte tenu des rendements de collection de 70 % environ pour le filtre fixe* :

TABLEAU I

Appareil de prélèvement	Surface de prélèvement	Quantité d'air filtrée(m ³)	Activité mesurée (pCi)	Activité par unité de volume pCi/m ³	Rendement collection %
Filtre fixe	100 cm ²	$205 \times 0,3 = 61,5$	173	2,81	$\rho_o = 70 \%$
Petite gaze	0,61 m ²	$19\,000 \times 0,61 = 11\,600$	$\frac{100}{85} \quad 1\,700$	0,172	$\frac{0,172}{2,81} \rho_o = 4,28 \%$
Grande gaze	2,45 m ²	$19\,000 \times 2,45 = 46\,500$	$\frac{100}{85} \quad 4\,700$	0,119	$\frac{0,119}{2,81} \rho_o = 2,97 \%$

* Le prélèvement ayant commencé à basse altitude, le rendement à utiliser n'est pas celui du filtre strictement vierge, mais une valeur plus élevée, déterminée spécialement par comparaison de filtres noircis de façon semblable.

ANNEXE 7

Ch. IV-1

DESCRIPTION ET UTILISATION DU CRAPAL

A 7/1 - Un Crapal comprend plusieurs parties (figure 1/IV-1) :

1/ Le pluviomètre* est constitué d'un réservoir hémisphérique de capacité 32 litres prévu pour pouvoir contenir les pluies les plus importantes tombées en une journée. Il est surmonté d'une couronne cylindrique de diamètre 35,7 cm² et de hauteur 10 cm dont le bord supérieur biseauté définit très exactement une surface de 0,1 m². L'ensemble, réalisé en plexiglas, est monté sur un trépied calculé de façon que l'ouverture se trouve exactement à 1 mètre du sol.

2/ Les bandes adhésives**, au nombre de huit, sont tendues sur un cadre en plexiglas, intercalé entre le réservoir et la couronne cylindrique (figure 1).

3/ Un orifice percé dans le fond du réservoir permet d'y fixer une cartouche, en forme de siphon, contenant 6 cm³ de résines échangeuses d'ions***chargées d'extraire de l'eau de pluie les éléments dissouts. Un filtre de coton placé en tête de la cartouche recueille les produits insolubles qui n'auraient pas été fixés sur les bandes adhésives (figure 2).

L'eau de pluie peut éventuellement être recueillie à la sortie de la cartouche, soit pour contrôler le bon fonctionnement du collecteur, soit pour mesurer l'importance des précipitations. En général ceci n'est pas fait et les Crapal étant placés dans des stations météorologiques, on utilise les chiffres indiqués par les appareils spécialisés de la station.

A 7/2 - EXPLOITATION

Au moment de la mise en place, seul le cadre adhésif est à préparer. Huit bandes parallèles de plastique adhésif, espacées de 1 mm pour laisser passage à l'eau, doivent être fixées sur le cadre, l'adhésif étant évidemment tourné vers le haut. La cartouche de résines, dans la plupart des cas, arrive à la station prête à l'emploi, c'est-à-dire avec les résines noyées dans de l'eau distillée. La préparation peut, à la rigueur, se faire avec de l'eau ordinaire, de source de préférence. Le volume d'eau nécessaire à la préparation n'étant que de quelques centimètres cubes, il ne peut y avoir d'erreur appréciable dans les mesures, que dans le cas où les précipitations pluvieuses seraient extrêmement faibles (moins de 1 mm par mois), et la préparation sur place avec de l'eau ordinaire peut donc être étendue sans inconvénient à la plupart des stations.

Chaque ensemble adhésif-résines reste fixé sur le collecteur pendant un mois. Au bout de ce temps les bandes adhésives sont roulées et placées dans une petite boîte en matière plastique. La cartouche est vidée de son eau, bouchée et placée avec la boîte en matière plastique (figure 3) dans un coffret en bois contreplaqué. Le coffret dont le volume est 1 500 cm³ et le poids à l'expédition est 500 grammes, est envoyé au laboratoire d'analyses (par la poste par exemple). Au laboratoire l'adhésif et la résine sont traités séparément. L'adhésif est séparé de son support par dissolution dans du tétrachlorure de carbone (CCl₄). La solution est filtrée et les radioactivités α

* Plasticform - 100, rue Danièle Casanova - Ivry.

**SABA Réf. 50 - APIS - Bellegarde (Ain).

***Anioniques : AMBERLITE IRA 410 - Cathioniques : DOWEX 50.



Figure 1/A.7 - Le C. R. A. P. A. L. : bandes adhésives.

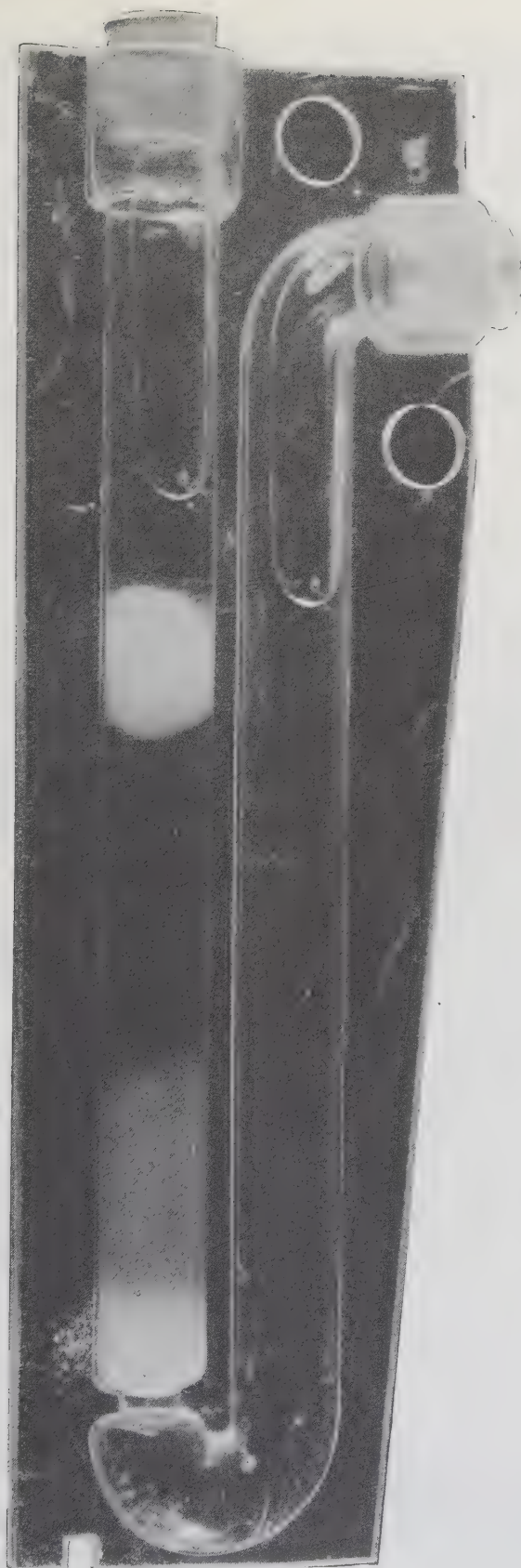


Figure 2/A.7 - Cartouche échangeuse d'ions.



Figure 3/A.7 - Emballage des résines et des bandes adhésives (ou gazes).

et β sont mesurées sur le filtre. L'expérience montre que la quasi totalité de la radioactivité est restée sur le filtre. La résine, une fois sortie de la cartouche est calcinée sous un radiateur à infra-rouge et la radioactivité β de la cendre est mesurée au compteur Geiger-Müller.

Une autre voie de mesure a consisté à sécher les résines, et les mesurer au moyen d'un compteur β à scintillations, de surface $\# 20 \text{ cm}^2$, suffisante pour que l'autoabsorption ne soit pas importante.

A 7/3 - MODIFICATION DU COLLECTEUR DE RETOMBÉES SECHES

A partir de Octobre 1959 on a remplacé les bandes adhésives, d'un maniement et d'un traitement délicats, par une double couche de gaze chirurgicale (figure 2/IV.1). Celle-ci est calcinée et les cendres sont mesurées de manière classique. Des mesures spectrographiques γ (décrites à l'annexe 6) ont permis de s'assurer que la calcination ne provoquerait pas de pertes supérieures à 10 %.

A 7/4 - RENDEMENT DU CRAPAL

Le rendement de collection est le rapport entre l'activité totale tombant au sol sur $0,1 \text{ m}^2$ et l'activité collectée par l'appareil. Pour mesurer ce rendement à la station de Saclay on a recueilli la totalité de l'eau qui est passée à travers la résine pendant le temps d'utilisation de celle-ci. Cette eau a été évaporée sans ébullition sous épiradiateur infra-rouge et l'activité du résidu a été mesurée avec les ensembles de comptage utilisés pour la résine et l'adhésif. L'activité totale est ainsi déterminée, et par là même le rendement de collection.

$$\text{Rendement de collection} = \frac{\text{Activités adhésif (ou gaze) + résines}}{\text{Activités adhésif (ou gaze) + résines + eau}}$$

Ce rendement a été mesuré d'abord au moyen de solutions de produits de fissions de concentration connue, puis par exposition aux retombées radioactives.

Le rendement global du collecteur (modèle avec gaze) varie entre 92 % et 100 %, avec une valeur moyenne de 97 %. La plus grande partie de l'activité (de 60 à 85 %) se fixe sur la gaze, le filtre de coton retenant à peine le dixième de cette activité. Par contre le rendement de collection de la cartouche de résine, pour les produits solubles qui y parviennent, varie de 68 % à 97 % (valeur moyenne 80 %). Parmi les produits qui ne sont pas parfaitement retenus, il faut citer le ruthénium.

Le fort rendement de collection de la gaze ne signifie pas que les produits collectés par elle soient tous insolubles : une fraction importante de césium, par exemple se retrouve sur la gaze. Il semble que, lorsqu'il pleut, un film liquide continu se forme sur la gaze qui retient la totalité des précipitations. L'eau s'écoule ensuite lentement mais de nombreux produits restent absorbés par les fils de coton. Ce fait très remarquable est à l'origine des succès remportés par ce type de collecteur, les produits les plus adsorbables ne parvenant pas au réservoir collecteur, ce qui élimine les risques d'adsorption sur les parois de ce dernier.

Compte tenu des pertes par traitement d'échantillons, le rendement global du Crapal, est donc de l'ordre de 90 %, en ce qui concerne les précipitations. Une évaluation de son rendement pour les retombées sèches est effectuée au Chapitre IV - 2.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	5
<u>PREMIERE PARTIE</u> - DONNEES GENERALES SUR L'ATMOSPHERE ET LES TRACEURS RADIOACTIFS	7
1/ L'atmosphère et les moyens d'étude classiques.....	9
2/ Progrès à attendre de l'utilisation des traceurs radioactifs dans l'atmosphère.....	12
<u>DEUXIEME PARTIE</u> - LES AEROSOLS RADIOACTIFS DANS LA BASSE ATMOSPHERE.....	15
<u>Chapitre II - 1</u> - Aérosols radioactifs présents dans l'atmosphère.....	17
1/ Origine des aérosols radioactifs.....	17
2/ Fragments de roches en suspension.....	17
3/ Produits de désintégration des éléments radioactifs naturels gazeux.....	18
4/ Produits de l'action du rayonnement cosmique.....	23
5/ Composition de l'atmosphère en aérosols radioactifs naturels.....	25
6/ Effluents des réacteurs nucléaires.....	25
7/ Produits de fission provenant des explosions nucléaires.....	28
8/ Produits d'activation.....	40
9/ Matières fissiles.....	41
10/ Décroissance d'un prélèvement d'aérosols radioactifs.....	41
<u>Chapitre II - 2</u> - Mesure de la radioactivité β des aérosols, dans la basse atmosphère.....	43
1/ Nécessité du prélèvement.....	43
2/ Méthodes de collection des aérosols de l'atmosphère.....	43
3/ Distinction entre les différentes catégories d'aérosols radioactifs.....	47
4/ Mesure de la radioactivité β du prélèvement.....	47
5/ Description du réseau de stations de prélèvements et de mesures des aérosols radioactifs.....	50
<u>Chapitre II - 3</u> - Résultats des mesures de concentration des aérosols radioactifs naturels loin des continents.....	53
1/ Intérêt de ces mesures.....	53
2/ Concentration du radon au dessus de l'Atlantique Nord.....	53
3/ Concentration du radon en Terre Adélie.....	55
4/ Concentration du radon aux îles Kerguelen.....	56
5/ Interprétation des résultats.....	56

	Pages
<u>Chapitre II - 4</u> - Résultats des mesures de radioactivité artificielle dans la basse atmosphère	59
1/ Caractères généraux de ces résultats.....	59
2/ Validité des résultats obtenus.....	61
3/ Evolution générale de la radioactivité artificielle des aérosols en France jusqu'en Août 1961.....	77
4/ Evolution des aérosols radioactifs artificiels dans le monde, de 1959 à Août 1961.	82
5/ Evolution de la concentration en aérosols radioactifs artificiels au cours de la période "e" (Septembre 1961 - Février 1962).....	87
6/ Etude des variations à court terme de la concentration des aérosols radioactifs artificiels.....	96
7/ Interprétation des résultats.....	104
<u>TROISIEME PARTIE</u> - LES AEROSOLS RADIOACTIFS DANS LA HAUTE ATMOSPHERE.....	107
<u>Chapitre III - 1</u> - Buts et techniques des prélèvements en haute atmosphère.....	109
1/ Buts.....	109
2/ Généralités sur les techniques de prélèvements en haute altitude.....	109
3/ Technique "standard" de collection des aérosols en haute altitude par ballons.....	110
4/ Dispositifs collecteurs à 6 voies de prélèvements.....	116
5/ Collection massive des poussières stratosphériques sur gaze.....	116
<u>Chapitre III - 2</u> - Résultats des mesures de concentration des aérosols radioactifs artificiels dans la haute atmosphère.....	121
1/ Précision et validité des résultats.....	121
2/ Répartition verticale des aérosols radioactifs artificiels au dessus de la région parisienne.....	122
Appendice : Résultats numériques.....	133
<u>QUATRIEME PARTIE</u> - LES RETOMBÉES RADIOACTIVES.....	135
<u>Chapitre IV - 1</u> - Problèmes posés par la mesure du dépôt sur le sol des débris radioactifs artificiels.....	137
1/ Raisons de cette étude.....	137
2/ Modes de nettoyage de l'atmosphère et problèmes posés par leur étude.....	137
3/ Description du Crapal et du réseau de stations de collection des retombées radioactives.....	139
<u>Chapitre IV - 2</u> - Examen des résultats des mesures de retombées radioactives sur la France	145
1/ Aspect aléatoire des mesures de dépôt des débris radioactifs.....	145
2/ Collection des retombées sèches par le Crapal.....	151
3/ Nettoyage de la troposphère par les précipitations.....	155
4/ Valeur statistique du réseau Crapal français.....	166
<u>Chapitre IV - 3</u> - Evaluation des débris radioactifs artificiels déposés à la surface du globe	171
1/ Evaluation de la radioactivité β globale déposée sur la France.....	171
2/ Accumulation de radionuclides à longues périodes.....	172

	Pages
3/ Répartition géographique des retombées radioactives en France et dans le monde..	173
4/ Conclusion.....	177
<u>CINQUIEME PARTIE - CONCLUSIONS.....</u>	179
1/ Généralités sur les mesures de radioactivité.....	179
2/ Comportement des aérosols radioactifs artificiels dans la stratosphère.....	180
3/ Transfert des aérosols radioactifs artificiels de la stratosphère à la troposphère..	181
4/ Circulation des aérosols dans la troposphère.....	182
5/ Nettoyage de la troposphère.....	183
6/ Bilan de la radioactivité.....	184
<u>BIBLIOGRAPHIE.....</u>	185
<u>ANNEXE 1</u> - Contribution relative des divers aérosols radioactifs à la radioactivité β globale d'un filtre.....	189
<u>ANNEXE 2</u> - Description et performances du compteur β à scintillations à grande surface et faible mouvement propre.....	199
<u>ANNEXE 3</u> - Liste des stations de prélèvements des aérosols et description de leur équipement.....	203
<u>ANNEXE 4</u> - Mesure du débit des aspirateurs en haute altitude.....	207
<u>ANNEXE 5</u> - Mesure du rendement de collection des filtres à haute altitude.....	211
<u>ANNEXE 6</u> - Rendement de filtration des gazes.....	215
<u>ANNEXE 7</u> - Description et utilisation du Crapal.....	219

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

"MESURE DE L'INCLINAISON DU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE PAR EFFET HALL".

Vu et approuvé :

Paris, le 14 novembre 1963

Le Doyen de la Faculté des Sciences,
Marc ZAMANSKY

Vu

et Permis d'imprimer :

Le Recteur de l'Académie
de Paris,
Jean ROCHE

IMP. LOUIS-JEAN — GAP

Dépôt légal n° 190 — 1964

